



# Recherches en Electrostatique - Actualité d'une science ancienne et applications à la caractérisation des matériaux. Mémoire d'Habilitation à Diriger des Recherches

Philippe Molinié

## ► To cite this version:

Philippe Molinié. Recherches en Electrostatique - Actualité d'une science ancienne et applications à la caractérisation des matériaux. Mémoire d'Habilitation à Diriger des Recherches. Matière Condensée [cond-mat]. Université Paris Sud - Paris XI, 2010. tel-00540737

**HAL Id: tel-00540737**

**<https://theses.hal.science/tel-00540737>**

Submitted on 29 Nov 2010

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

*Mémoire*  
*Habilitation à Diriger des Recherches*

**Recherches en électrostatique.  
Actualité d'une science ancienne  
et applications à la  
caractérisation des matériaux.**

Philippe Molinié

*Travaux effectués au département Energie  
de Supélec, à Gif-sur-Yvette*

*Présentés le 2 juillet 2010 devant le jury composé de :*

M. Gilbert Teyssède, Directeur de Recherches au CNRS, rapporteur  
M. Lucian Dascalescu, Professeur, Université de Poitiers, rapporteur  
M. Olivier Lesaint, Directeur de Recherches au CNRS, rapporteur  
M. Gérard Touchard, Professeur émérite, Université de Poitiers, examinateur  
M. Gérard Berger, Directeur de Recherche au CNRS, examinateur  
M. Serge Agnel, Professeur, Université Montpellier 2, examinateur



**Homer Simpson :** Oui allô ?

**Homme :** *[Il appelle de Stockholm mais parle avec un fort accent russe]* J'ai l'honneur de vous informer que l'on a décerné à vous le prix Nobel !

**Homer Simpson :** J'ai eu le Prix Nobel ?! Ah, bah, c'est pas trop tôt ! Euh, c'est pour quoi ? Mon physique ?

**Homme :** Vous êtes professeur John Frink n'est-il pas ?

**Homer Simpson :** Si je dis non, je l'aurais quand même ?



# Sommaire

<b>Sommaire .....</b>	<b>5</b>
<b>CV DETAILLE .....</b>	<b>11</b>
<b>A. Notice individuelle .....</b>	<b>13</b>
A.1 Titres universitaires : .....	13
A.2 Parcours professionnel : .....	13
<b>B. Notice bibliographique .....</b>	<b>14</b>
B.1 Tableau de la production scientifique .....	14
B.2 Articles dans des revues internationales avec comité de lecture .....	14
B.2.1 En rapport avec les travaux de thèse .....	14
B.2.2 Travaux postérieurs à la thèse .....	14
B.3 Articles dans des revues nationales avec comité de lecture .....	15
B.4 Chapitres dans des ouvrages avec comité de lecture .....	15
B.5 Publications dans des congrès internationaux avec actes et comité de lecture .....	16
B.5.1 En rapport avec les travaux de thèse .....	16
B.5.2 Travaux postérieurs à la thèse .....	16
B.6 Conférences invitées (hors congrès) .....	18
<b>C. Encadrement .....</b>	<b>19</b>
C.1 Encadrement et direction de thèses .....	19
C.2 Encadrement de stages de DEA et Master .....	19
C.3 Encadrement de stages de fin d'études d'école ingénieur .....	19
C.4 Encadrement de Post-Doc .....	20
<b>D. Rayonnement scientifique .....</b>	<b>20</b>
D.1 « Reviewing » .....	20
D.2 Participation à des jurys de thèse .....	20
D.3 Participation à des GdR .....	21
D.4 Collaborations internationales .....	21
D.5 Information scientifique et technique et vulgarisation : .....	21
D.6 Divers .....	21
<b>E. Responsabilités diverses .....</b>	<b>22</b>
E.1 Organisation d'une conférence internationale .....	22
E.2 Guest Editor .....	22
<b>F. Activités de recherche contractuelle .....</b>	<b>23</b>

F.1	Caractérisation de matériaux isolants pour l'électrotechnique.....	23
F.2	Caractérisation de revêtements isolants et de leur vieillissement .....	23
F.3	Electrostatique .....	23
F.4	Décharges et claquages.....	24
<b>G.</b>	<b>Activités d'enseignement .....</b>	<b>25</b>
G.1	Formation initiale Supélec.....	25
G.1.1	Cours « Matériaux Isolants et Décharges Electriques » .....	25
G.1.2	Travaux Dirigés .....	25
G.2	Formation continue Supélec .....	25
G.3	Autres .....	25
<b>H.</b>	<b>Résumé des travaux de recherche .....</b>	<b>26</b>
<b>I.</b>	<b>Résumé des perspectives .....</b>	<b>27</b>
	<b>TRAVAUX ET PERSPECTIVES DE RECHERCHE .....</b>	<b>29</b>
<b>A.</b>	<b>L'Electrostatique, une science poussiéreuse ? .....</b>	<b>31</b>
<b>B.</b>	<b>Modélisation dans toutes ses composantes du comportement d'un matériau soumis à une charge électrique.....</b>	<b>33</b>
B.1	Contexte scientifique : un éclatement du savoir.....	33
B.2	Mesures de courants et mesures de potentiel de surface.....	35
B.2.1	Les deux cas-type .....	35
B.2.2	Théorie générale du déclin de potentiel .....	36
B.3	Déclin et retour de potentiel, une synthèse bibliographique .....	39
B.3.1	Construction d'une base de données.....	39
B.3.2	Contexte industriel .....	39
B.3.3	Dispositifs de charge.....	41
B.3.4	Sondes de mesure .....	42
B.3.5	Modélisations par polarisation dipolaire .....	43
B.3.6	Développements de modélisations par conduction intrinsèque .....	46
B.3.7	Développements de modélisations par injection.....	48
B.4	Analyse critique de la bibliographie, et proposition d'une méthodologie.....	56
B.4.1	Position du problème : Quel modèle choisir ? .....	56
B.4.2	Analyse critique de la bibliographie .....	57
B.4.3	Développement d'une méthodologie .....	57
B.5	Conclusions - Perspectives .....	61
<b>C.</b>	<b>Développement de techniques électrostatiques .....</b>	<b>63</b>

C.1	L'avenir des techniques de potentiel de surface.....	63
C.2	Banc de mesures développé à Supélec .....	64
C.3	Maîtrise de la charge .....	65
C.3.1	La triode corona alimentée en courant.....	65
C.3.2	Durées de charge et modulation de l'action de la décharge .....	65
C.3.3	Diverses géométries de postes de charge.....	66
C.3.4	Charge par contact .....	66
C.4	Cartographies de potentiel.....	67
C.5	Retour de potentiel .....	68
C.6	Développement d'un banc de mesure de retour de potentiel après polarisation d'un isolant entre électrodes .....	69
C.7	Développement de mesures électrostatiques de charge .....	70
C.8	Conclusions - Perspectives .....	71
<b>D.</b>	<b>Caractérisations de matériaux et systèmes par mesures de potentiel .....</b>	<b>73</b>
D.1	Caractérisations de résines époxy.....	73
D.1.1	Introduction.....	73
D.1.2	Mise en évidence expérimentale de la polarisation comme facteur principal du déclin	73
D.1.3	Mise en évidence d'effets non linéaires, attribués à l'injection de charge.....	75
D.1.4	Réponse d'une cavité dans un composite époxy-fibre de verre FR4 .....	77
D.2	Caractérisation de films de polypropylène d'épaisseur 6µm à différents niveaux de charge et de température .....	78
D.2.1	Introduction.....	78
D.2.2	Réponse de base.....	79
D.2.3	« Pic A » attribué au dépiégeage de surface de la charge injectée pendant la décharge couronne. ....	79
D.2.4	« Pic B » attribué à l'injection et à la conduction ioniques .....	80
D.2.5	« Pic C » attribué à l'émission à la contre-électrode.....	81
D.3	Etalement et injection de charge sur des films de polyéthylène téréphtalate (PET).....	81
D.3.1	Contexte et paramètres expérimentaux .....	81
D.3.2	Etalement de la charge.....	82
D.3.3	Cartographies différentielles de potentiel .....	82
D.3.4	Intérêt de ces résultats.....	84
D.4	Injection de charge sur des plaques d'élastomères silicones .....	84
D.4.1	Contexte .....	84



D.4.2	Quelques résultats.....	84
D.5	Caractérisation de systèmes de peintures anticorrosion vieillis .....	86
D.5.1	Contexte .....	86
D.5.2	Sensibilité de la technique.....	86
D.5.3	Caractérisation détaillée de divers types de défauts .....	87
D.6	Conclusions et perspectives .....	91
D.6.1	Forces et faiblesses de ces travaux .....	91
D.6.2	Perspectives.....	92
<b>E.</b>	<b>L’animation d’un réseau de recherche en Electrostatique, et quelques réflexions sur cette discipline et son histoire .....</b>	<b>97</b>
E.1	Introduction.....	97
E.2	Animation d’un réseau de recherches en Electrostatique .....	98
E.2.1	La naissance de nouvelles institutions et réseaux internationaux en Electrostatique (1967-1977) .....	98
E.2.2	La Société Française d’Electrostatique .....	99
E.2.3	La 6 <sup>ème</sup> conférence SFE .....	100
E.2.4	Montrer la cohérence et la vitalité d’un champ de recherches .....	101
E.3	Travaux d’histoire des sciences .....	101
E.3.1	Introduction.....	101
E.3.2	Les techniques électrostatiques, au cœur de l’histoire des premières années de recherches sur la radioactivité (de Pierre et Jacques à Marie Curie).....	102
E.3.3	D’autres techniques électrostatiques, au cœur du développement de la physique atomique en France (Frédéric Joliot) .....	103
E.3.4	L’utilisation de l’électrostatique dans la médiatisation de la science .....	103
E.4	Conclusions et perspectives .....	104
<b>F.</b>	<b>En guise de conclusion générale .....</b>	<b>107</b>
	<b>Références .....</b>	<b>109</b>
	<b>Liste des figures et tables.....</b>	<b>115</b>
	<b>ANNEXES.....</b>	<b>119</b>
	<b>Liste des publications présentées.....</b>	<b>121</b>





# I

## **CV DETAILLE**



## A. Notice individuelle

Molinié Philippe

né le 18/01/1965 à Suresnes (France - 92) ; nationalité française

Professeur Assistant

Département Energie - Supélec

Plateau de Moulon, 3 rue Joliot-Curie

91192 Gif-sur-Yvette Cedex

01 69 85 15 25

[philippe.molinie@supelec.fr](mailto:philippe.molinie@supelec.fr)

### A.1 Titres universitaires :

- Ingénieur Supélec, option Electronique des Matériaux (1987)
- Docteur de l'Université Paris VI : *Etude de la neutralisation de la charge électrique déposée par effet couronne à la surface d'un isolant. Application au suivi des premiers stades de vieillissement d'un isolateur époxyde* (1992)

### A.2 Parcours professionnel :

- 1994-2009 : Enseignant-chercheur à Supélec, Département Energie
- 1994 : laboratoire de Physique des Décharges (recherches sur la bougie d'allumage - CDD 6 mois)
- 1993 : A.T.E.R. à l'Université Paris VI (Electronique)
- 1989-1992 : Doctorant Laboratoire de Physique des Décharges (CNRS), bourse docteur-ingénieur cofinancé par la société Merlin-Gérin / Schneider Electric.
- 1988 : Service National

## B. Notice bibliographique

### B.1 Tableau de la production scientifique

Nombre de publications	Total	3 dernières années
Revue internationale avec comité de lecture	11	6
Revue nationale avec comité de lecture	2	0
Actes de congrès avec comité de lecture	25	6
Livres ou chapitres de livre	4	3
Conférences invitées dans des congrès internationaux	0	-
Brevets	0	-

*Les publications présentées en gras sont jointes in extenso en annexe*

### B.2 Articles dans des revues internationales avec comité de lecture

#### B.2.1 En rapport avec les travaux de thèse

Molinié P., Goldman M., Gatellet J., "Surface potential decay on corona-charged epoxy samples due to polarization processes", J. Phys. D, 28, pp.1601-1610 (1995)

#### B.2.2 Travaux postérieurs à la thèse

Molinié P., "Charge injection in corona-charged polymeric films: potential decay and current measurements", J. Electrostatics, 45(4), pp. 265-273 (1999)

Llovera P., Molinié P., "New methodology for surface potential decay measurements. Application to the study of charge injection dynamics on polypropylene films", IEEE Trans. Dielectrics and Electr. Insul., 11, pp. 1049-1056 (2004)

Molinié P., "Measuring and Modeling Transient Insulator Response to Charging: the Contribution of Surface Potential Studies", IEEE Trans. Dielectrics and Electr. Insul., 12, pp.939-950 (2005)

Molinié P., Boudia S., "Une application méconnue et pourtant célèbre de l'électrostatique : les travaux de Marie Curie, de la découverte du radium à la métrologie de la radioactivité", *J.Electrostatics*, **64**, pp. 461-470 (2006)

Koch D., Molinié P., "Cavity detection on organic coatings by electrostatic measurements: A detailed study using FR4 fiberglass epoxy laminates", *J. Electrostatics* **66**, pp. 467-475 (2008)

Llovera P., Molinié P., Soria A., Quijano A., "Measurements of electrostatic potentials and electric fields in some industrial applications: basic principles", *J.Electrostatics*, **67** pp. 457-461 (2009)

Molinié P., Boudia S., "Mastering picocoulombs in the 1890s: the Curies' quartz-electrometer instrumentation, and how it shaped early radioactivity history", *J.Electrostatics*, **67**, pp. 524-530 (2009)

Molinié P., "Editorial : Electrostatics, the continuous renewal of an old science", *IEEE Trans. Dielectrics and Electr. Insul.*, **16**, pp. 585-586 (2009)

Molinié P., Touchard G., "Ancient Science, Current Problems: Insight into the Vitality of Electrostatics Research Today", *IEEE Trans. Dielectrics and Electr. Insul.*, **16**, pp. 587-595 (2009)

Molinié P., Boudia S., "Exhibiting sparks of Big Science to the public. Electrostatics, atomic machines and experience of Paris *Palais de la Découverte*", *IEEE Trans. Dielectrics and Electr. Insul.*, **16**, pp. 751-757 (2009)

### ***B.3 Articles dans des revues nationales avec comité de lecture***

Koch D., Molinié P., "Étalement de charge et effets anormaux sur des films de Polyéthylène Téréphtalate, étudiés par cartographie de potentiel", *Revue Internationale de Génie Electrique*, **9**, pp. 449-463 (juillet 2006)

Molinié P., Alvarez D., "Etude de l'injection de charge sur des plaques d'élastomère silicone par mesures du potentiel de surface", *Revue Internationale de Génie Electrique*, **9**, pp. 389-404 (juillet 2006)

### ***B.4 Chapitres dans des ouvrages avec comité de lecture***

Molinié P., "Les machines atomiques : les instruments de la physique changent d'échelle", in *Doisneau chez les Joliot Curie, un photographe au pays de physiciens*, Musée des arts et métiers/CNAM et Romain Pages Editions (2005)

Molinié P., "Réponse d'un matériau isolant à la charge électrique : mesure et modélisation", in *Matériaux diélectriques pour le génie électrique 1: propriétés, vieillissement et modélisation (Traité EGEM, série Génie électrique)*, Hermès-Lavoisier (2007)



Boudia S., Molinié P., "Atommaschinen und Wissenschaftsmuseen: Die Weltausstellung 1937 in Paris" in *Atombilder. Ikonografie des Atoms in Wissenschaft und Öffentlichkeit des 20. Jahrhunderts. [Atomic Images: Iconographies of the Atom in 20th century science and culture]*, Ch. Bigg et J. Henning (eds), Wallstein Verlag (2009)

Molinié P., "The insulating material response to electrical charging: measurements and models", in *Dielectric materials for electrical engineering*, Juan Martinez-Vega Ed., ISTE Wiley (2010)

## **B.5 Publications dans des congrès internationaux avec actes et comité de lecture**

### **B.5.1 En rapport avec les travaux de thèse**

Molinié P., Goldman M., Gatellet J., "Electrical characterization of epoxy insulators by the study of the surface potential decay and return : a new interpretation by polarization processes", Proc. 4th Int. Conf. on Conduction and Breakdown in Solid Dielectrics, Sestri Levante, pp. 251-255 (1992)

Molinié P., "Evolution of the surface layer appearing with the corona ageing of epoxy samples", Proc. 5th Int. Conf. on Conduction and Breakdown in Solid Dielectrics, Leicester (1995)

Molinié P., "Potential decay interpretation on insulating films: necessity of combining charge injection and slow volume polarization processes", Proc. 7th Int Conf. Dielectric Materials, Measurements and Applications, Bath, p.50-55 (1996)

### **B.5.2 Travaux postérieurs à la thèse**

Molinié P., "Charge injection in corona-charged polymeric films, studied by potential decay and current measurements", Proc. 8th Int Conf on Electrostatics, Poitiers, Add.Issue 46-51 (juin 1997)

Molinié P., Llovera P., "Mise en oeuvre et interpretation des mesures de potentiel de surface", 2<sup>nd</sup>e Conférence de la Société Française d'Electrostatique, Montpellier (juillet 2000)

Molinié P., Llovera P., "Surface potential measurements : implementation and interpretation", 8<sup>th</sup> Conference on Dielectric Materials, Measurements and Applications, Edinburgh (septembre 2000)

Llovera P., Molinié P., "Charge injection dynamics on polypropylene films at high electrical fields, studied by potential decay measurements", Proc. 4<sup>th</sup> International Conf. On Electric Charges in Non-Conductive Materials, Tours, p 400-404 (juillet 2001)

Molinié P., Llovera P., "Théorie et pratique des mesures de retour de potentiel : des outils pour le suivi de l'injection de charge sur les films isolants", 3<sup>ème</sup> conférence de la Société Française d'Electrostatique, Toulouse (juillet 2002)

Llovera P., Molinié P., "Charge injection dynamics on thin films : limited by surface detrapping or by charge drift mobility ? A new contribution using surface potential measurements", 3<sup>ème</sup> conférence de la Société Française d'Electrostatique, Toulouse (juillet 2002)

Molinié P., Capron C., Brodin A., "Apport des mesures de potentiel de surface à la caractérisation du vieillissement d'un revêtement anticorrosion", Conférence Protection Corrosion Durabilité (PROCOD), Toulon (septembre 2004)

Molinié P., Boudia S., "Une application méconnue et pourtant célèbre de l'électrostatique : les travaux de Marie Curie, de la découverte du radium à la métrologie de la radioactivité", 4<sup>ème</sup> conférence de la Société Française d'Electrostatique, Poitiers (septembre 2004)

Molinié P., Alvarez D., "Etude de l'injection de charge sur des plaques d'élastomère silicone par mesures du potentiel de surface", Conférence Matériaux pour le Génie Electrique, Lyon (décembre 2005)

Koch D., Molinié P., "Etalement de charge et effets anormaux sur des films de polyéthylène terephthalate, étudiés par cartographie de potentiel", Conférence Matériaux pour le Génie Electrique, Lyon (décembre 2005)

Notingher jr. P., Agnel S., Molinié P., Sylvestre A., Olariu M., Castellon J., Toureille A., Petre A., " Etude des charges d'espace dans le polyéthylène terephthalate soumis a des forts champs électriques", Conférence Matériaux pour le Génie Electrique, Lyon (décembre 2005)

Sylvestre A., Jomni F., Molinié P., Herous L., El Kamel F., " Propriétés électriques du polyéthylène-teréphthalate (PET) en couche épaisse", Conférence Matériaux pour le Génie Electrique, Lyon (décembre 2005)

Lévy L., Dirassen B., Reulet R., Van Eesbeek M., Molinié P., "Dark and radiation induced conductivity on space used external coatings", 10th Int. Symp. Materials in a Space Environment, Collioure (juin 2006)

Molinié P. : « Comment modéliser un isolant en électrostatique ? Approches classiques et modernes d'un problème complexe », Proc. 5<sup>ème</sup> conférence de la Société Française d'Electrostatique, Grenoble, pp.27-32 (août 2006)

Koch D., Molinié P., "Détection de Défauts d'un Revêtement Organique par Mesures Electrostatiques", Proc. 5<sup>ème</sup> conférence de la Société Française d'Electrostatique, Grenoble, pp.21-26 (août 2006)

Koch D., Molinié P., "Mesures de potentiel de surface : Application à la détection du vieillissement d'un revêtement anticorrosion", Conférence Matériaux 2006, Dijon (novembre 2006)

Molinié P., Touchard G., "Science ancienne, problèmes actuels : la vitalité de la recherche en électrostatique aujourd'hui", conf. Plénière, Proc. 6<sup>ème</sup> Conférence SFE, Paris pp.1-9 (Juillet 2008)

Molinié P., Boudia S., "Exposer les étincelles de la science au public : les « machines atomiques » et la création du Palais de la Découverte", Proc. 6<sup>ème</sup> Conférence SFE, Paris, pp. 33-38 (Juillet 2008)

Llovera P., Molinié P., Soria A., Quijano A., "Moulins à champ et sondes électrostatiques dans l'industrie et les normes. Quelques exemples et des rappels d'électrostatique élémentaire", Conf. Plénière, Proc. 6<sup>ème</sup> Conférence SFE, Paris, pp.80-88 (Juillet 2008)

Agnel S., Castellon J., Notingher Jr P., Molinié P., Petre A., Malec D., "Etude des propriétés de charge d'alumines polycristallines utilisées comme substrat dans les composants de puissance", Proc. 6<sup>ème</sup> Conférence SFE, Paris, pp.113-118 (Juillet 2008)

Molinié P., Koch D., Llovera P., "Return Voltage Measurements: Theory and Applications to Charge Injection Monitoring", Proc. 13th Int. Symp. Electrets, Tokyo, p.121 (Septembre 2008)

Molinié P., Agnel S., Castellon J., "Investigations on charge accumulation and relaxation in polycrystalline  $Al_2O_3$ ", 10<sup>th</sup> Int. Conf. on Conduction and Breakdown in Solid Dielectrics, Potsdam (article accepté, Juillet 2010)

## ***B.6 Conférences invitées (hors congrès)***

"Dynamique de l'injection de la charge électrique dans un matériau isolant", conférence invitée, Laboratoire d'Electroaérodynamique, Poitiers-Futuroscope, 20 mars 2003

"Quelques aperçus sur la recherche sur la charge électrique dans les matériaux isolants", conférence invitée, Ecole nationale d'ingénieurs de Monastir, Tunisie, 25 novembre 2004

"De la pesée de la radioactivité aux machines atomiques, les instruments de la physique changent d'échelle (1897-1942)", séminaire recherche de l'IPN, Orsay, 27 juin 2005

## C. Encadrement

### C.1 Encadrement et direction de thèses

- Pedro Llovera (1999-2002), Thèse de l'Université Paris-Sud / Universidad Politécnica de Valencia : *Etude des mécanismes d'injection de charge dans les matériaux isolants au moyen de mesures électrostatiques de déclin et retour de potentiel. Nouveaux outils d'analyse.* (90 %, directeur de thèse officiel M.Meunier)
- Delphine Koch (2004-2008), Thèse de l'Université Paris-Sud : *Caractérisation de surface par cartographie du potentiel; application à la détection de défauts liés à la corrosion* (100 %. Directeur de thèse par dérogation)
- Laid Idoughi (depuis 2008), Thèse de l'Université Paris-Sud: *Modélisation électro-magnéto-thermique des machines électriques*, (Coencadrement 10%, directeur de thèse F. Bouillaut, co- encadrement X. Mininger)
- Rachelle Hanna (depuis octobre 2009) : *Transport de charges dans les matériaux diélectriques en environnement spatial* (Coencadrement 40%, directeur de thèse T. Paulmier - ONERA)
- Hoang-Nam Nguyen (depuis mai 2010) : *Caractérisation électrique de nanocomposites ferroélectriques innovants pour le stockage ultra-rapide de l'énergie* (Coencadrement 75 %, directeur de thèse)

### C.2 Encadrement de stages de DEA et Master

- Stage d'Antoine Brodin, DEA de Génie Electrique de l'Université Paris XI / Paris VI (2004) : *Réalisation d'un banc de cartographie de potentiel de surface* (100%)

### C.3 Encadrement de stages de fin d'études d'école ingénieur

Stages de fin d'études ingénieur de l'Escuela Técnica Superior de Ingenieros Industriales, Universidad Politécnica de Valencia, Espagne :

- Alejandro Berenguer Tormo (2000) : *Etude de films polymères* (100%)
- Lisardo Fort Alarcon (2001) : *Banc de mesures pour transformateurs pour tubes à néon* (100%)
- Ernesto Martinez Piqueras (2000) : *Etude de l'électrisation d'hydrocarbures par frottement dans une tubulure plastique* (100%)

Stage de fin d'études ingénieur de la LEA-Artibai - London Metropolitan University à Markina (Espagne) :

- Dani Alvarez (2005) : *Caractérisation de plaques de silicone pour applications électriques en utilisant la technique de cartographie de potentiel* (100%)

## C.4 Encadrement de Post-Doc

- Adrian Mihalcioiu (juin 2009-septembre 2010) : Développement de techniques de mesures électrostatiques (100 %)

# D. Rayonnement scientifique

## D.1 « Reviewing »

18 Reviews pour les journaux suivants :

*Journal of Electrostatics* : 6

*Journal of Physics D.* : 3

*IEEE Transactions on Industry Applications* : 3

*IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation* : 2

*Revue Internationale de Génie Electrique (RIGE)* : 2

*European Physics Journal (EPJ)* : 1

*Physica Status Solidi* : 1

## D.2 Participation à des jurys de thèse

Participation à 6 jurys de thèse :

- Slim Fakhfakh : « *Etude des phénomènes de charge des matériaux diélectriques soumis à une irradiation électronique permanente* ». Thèse de Doctorat de l'Université de Reims Champagne-Ardenne, Reims, 6 décembre 2004
- Fidel Chávez : « *Comportement électrique de films de poly (éthylène naphtalène -2,6-dicarboxylate) (PEN) à forts champs électriques : contribution à l'étude des mécanismes de conduction électrique* ». Thèse de Docteur de l'Université Paul Sabatier, Toulouse, 8 Février 2006.
- Charlotte Perrin : « *Etude des phénomènes d'accumulation et de transport de charge dans des diélectriques irradiés* ». Thèse de Doctorat de l'Université de Toulouse, Toulouse, 25 octobre 2007
- Delphine Koch : « *Caractérisation de surface par cartographie du potentiel ; application à la détection de défauts liés à la corrosion* ». Thèse de Doctorat de l'Université Paris XI, 15 février 2008
- Delphine Fossati : « *Caractérisation par la méthode Corona de diélectriques à faible et très faible permittivité* », Thèse de Doctorat de l'Institut Polytechnique de Grenoble, Grenoble, 24 Novembre 2008
- Dimitri Beauguitte : « *Etude du vieillissement électrique du Polyéthylène Téréphtalate pour applications haute tension* », Thèse de Doctorat de l'Université Montpellier II, Montpellier, 18 décembre 2009

### **D.3 Participation à des GdR**

- Participation active à l'opération « Synergie des contraintes » de l'équipe thématique « matériaux » du GdR ME<sup>2</sup>MS (2002-2006).
- Participation active au « Groupe « Matériaux Diélectriques » du Socle « Matériaux » du GDR SEEDS (depuis 2007)
  - o Organisateur de la réunion de lancement (Supélec 1<sup>er</sup> et 2 mars 2007)
  - o Porteur d'un projet interne « Développement de modélisations et d'outils d'analyse de mesures de potentiel de surface » financé sur 2009-2010

### **D.4 Collaborations internationales**

- Participation au réseau d'excellence européen DENIMEL (*Development of New Dielectric Materials for Multisectoral Applications*) (2002-2003)
- Collaborations internationales informelles mais régulières :
  - o ITV Valencia (Pedro Llovera): dossier de candidature Egide PAI (Picasso), publications communes
  - o ENIM Monastir (Nasreddine Bouguila): dossier de candidature Egide PAI (Utique), 2 séjours invités de N.Bouguila à Supélec, 1 séjour invité de P.Molinié à Monastir

### **D.5 Information scientifique et technique et vulgarisation :**

- Participation à la reconstitution du système de mesures de la radioactivité par Marie Curie, et au film *L'expérience retrouvée*, CNRS Audiovisuel/Institut Curie, 1998
- Conseiller scientifique de l'exposition *Doisneau chez les Joliot-Curie, un photographe au pays des physiciens* au CNAM (2005)

### **D.6 Divers**

- Membre du comité scientifique de la Société Française d'Electrostatique
- 7 expertises de dossiers CIFRE, une expertise de demande d'allocations pour le conseil régional de Champagne-Ardenne

## E. Responsabilités diverses

### E.1 Organisation d'une conférence internationale

Principal organisateur de la 6<sup>ème</sup> Conférence de la Société Française d'Electrostatique (7- 9 juillet 2008) :

- 3 journées, dont une au Palais de la Découverte, et une autre organisée en commun avec le professeur Akira Mizuno de l'Université de Toyohashi (Japon).
- 107 participants de 14 pays, 88 contributions écrites
- Edition d'un recueil : *6ème Conférence de la société française d'électrostatique, Paris & Gif-sur-Yvette 7, 8 et 9 juillet 2008 : recueil de communications* / Philippe Molinié, Emmanuel Odic, Philippe Dessante, eds.. - Gif-sur-Yvette : Supélec, Département Énergie, DL 2008 (Paris : Impr. Copy house). - 1 vol. (493 p.) : ill., couv. ill. en coul. ; 30 cm.

### E.2 Guest Editor

Guest Editor du premier numéro spécial de la revue *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation* consacré à l'électrostatique (paru en juin 2009 - 25 articles sur cette thématique)

## **F. Activités de recherche contractuelle**

### ***F.1 Caractérisation de matériaux isolants pour l'électrotechnique***

#### ***Silec***

- 1996 : Caractérisation du vieillissement du polyéthylène isolant des câbles haute tension

#### ***Bolloré Technologies***

- 1999-2000 : Etude de films polypropylène

#### ***Rhodia Silicones***

- 2002 : Tenue en tension d'un câble torsadé en présence de défauts d'isolation
- 2003 : Tenue en tension d'une gaine fissurée suite au passage du test CR1
- 2003 : Contraintes électriques et processus de dégradation du revêtement d'un isolateur composite (étude bibliographique)

#### ***Projet SEFORA (groupe SAFRAN)***

- depuis 2009 : Etude du vieillissement d'isolations statoriques à haute température

#### ***Nexans***

- 2009-2010 : Étude et modélisation de la charge d'espace pour câble HVDC

### ***F.2 Caractérisation de revêtements isolants et de leur vieillissement***

#### ***Direction de la Construction Navale***

- 1995-1996 : Etude de faisabilité de la caractérisation d'un revêtement par mesures du potentiel de surface
- 1997-1998 : Caractérisation du vieillissement d'un revêtement par cartographies du potentiel de surface

#### ***Laboratoire Central des Ponts et Chaussées***

- 2000 : Cartographies de potentiel sur des revêtements anticorrosion

#### ***Rhodia Silicones***

- 2004-2005 : Caractérisation de plaques de silicone pour applications électriques en utilisant la technique de cartographie de potentiel

#### ***CNES***

- 2009-2010 : Etude du transport de charge dans les diélectriques pour des applications spatiales

### ***F.3 Electrostatique***

#### ***BP Chemicals***

- 1998 : Neutralisation de la charge électrostatique apparaissant dans un lit fluidisé



**Plastic Omnium**

- 1999 : Mesures de l'électricité statique sur des tubulures d'essence

**PSA**

- 2000 : Etude de la formation de la charge électrostatique affectant le conducteur sortant de son véhicule
- 2009 : Étude de solutions électrostatiques pour l'interaction entre un pneumatique et le bitume

**Renault**

- 2000 : Etude électrostatique sur les « Systèmes d'Aspiration sans Retour de Type T2 »

**Autoliv**

- 2001 : Analyse des phénomènes électrostatiques apparaissant dans le capteur d'accélération à bille d'un système de sécurité automobile

**DBV Technologies**

- 2007 : Caractérisation électrostatique de films électrets utilisés dans des patchs pour des applications médicales

**F.4 Décharges et claquages****DGA**

- 1997 : Claquage de surface le long d'une interface isolant / vide

**Aérospatiale**

- 1998 : Etude bibliographique concernant le claquage dans le vide ou aux très basses pressions

**EDF**

- 2002 : Préparation d'une campagne de tests de systèmes de mesures de décharges partielles sur un alternateur 600 MW

**Air Liquide**

- 2006 : Etude d'un analyseur de décharges partielles (étude menée avec Emmanuel Odic)

## **G. Activités d'enseignement**

### **G.1 Formation initiale Supélec**

42 hetd + 60 heures hetd d'étude industrielle par an

#### **G.1.1 Cours « Matériaux Isolants et Décharges Electriques »**

24 hetd/an

Cours en section « Systèmes Energétiques » en 3<sup>ème</sup> année à Supélec (niveau Master 2). Ce cours, créé à Supélec en 2004, associe physique du solide (isolants) et physique des décharges. Le format est de 18 heures de cours magistral et 4 séances de BE (bureau d'étude – 3 heures). La partie physique des décharges est confiée à Emmanuel ODIC du département Energie.

#### **G.1.2 Travaux Dirigés**

18 hetd/an

- **Circuits Electriques Linéaires (1<sup>ère</sup> année – 6 hetd/an)**
- **Electrotechnique (1<sup>ère</sup> année – 6 hetd/an)**
- **Physique du Solide (1<sup>ère</sup> année – 6 hetd/an)**

### **G.2 Formation continue Supélec**

15 hetd/an

- Participation à la session, créée en 2007 par Emmanuel ODIC : « Comprendre le vieillissement des isolants soumis à des décharges électriques ». La partie dont je suis chargé concerne les mécanismes impliqués dans le vieillissement des isolants solides (injection de charge, aspects thermiques, électrostatiques).
- Organisation d'une session de formation continue (2010) de 14h pour la société Prysmian, en 4 parties que j'assure intégralement (Electrostatique du vide, conduction et polarisation dans la matière – concepts de base, conduction et polarisation dans les solides réels, mécanismes de claquage et vieillissement des isolants synthétiques)

### **G.3 Autres**

- DEA de Génie Electrique de l'Université Paris VI –Paris XI(1995-1997) : *Physique des Diélectriques*
- ESME-Sudria (école d'ingénieurs) : cours de 5<sup>ème</sup> année *Matériaux isolants et leurs applications* (1996-2004).
- Master Professionnel Gestion et Distribution de l'Electricité, université de Bordeaux-1 : cours de *Physique des matériaux isolants*. (1998-2005)

## H. Résumé des travaux de recherche

Les activités électrostatiques que j'ai développées à Supélec sont les très modestes héritières d'une histoire prestigieuse, puisqu'elles sont en définitive issues des choix de Frédéric Joliot-Curie, qui dans les années 30 avait développé les premiers accélérateurs de particules français en créant le Laboratoire de Synthèse Atomique. Pour cela, il fallait notamment maîtriser la production et l'utilisation de tensions de plusieurs MV. Ces compétences « haute tension » ont été regroupées par la suite dans le Laboratoire de Physique des Décharges, qui a finalement abouti dans les locaux de Supélec. Roland Coelho, au début des années 1980, y apporta les premières sondes de mesure de potentiel et c'est dans ce laboratoire, aujourd'hui disparu en tant qu'entité indépendante, que j'ai fait ma thèse sous la direction de Max Goldman, à la frontière entre la physique de la décharge et l'électrostatique. Ces activités ont été ensuite transférées au Département Energie, avec le début de mon activité en 1994. Depuis, j'ai été le seul enseignant-chercheur permanent à porter cette thématique dans le Département, même si elle présente un lien avec l'activité menée par Emmanuel Odic et Mike Kirkpatrick sur les applications des plasmas froids. On peut regrouper mes travaux de recherche depuis lors selon 4 lignes directrices :

**La modélisation dans toutes ses composantes du comportement d'un matériau soumis à une charge électrique :** mon apport essentiel est d'avoir développé un mode opératoire permettant une exploitation plus sûre et plus détaillée des mesures de déclin de potentiel. D'une part, en montrant la nécessité de prendre en compte la superposition de mécanismes multiples dans la réponse d'un isolant lorsqu'on effectue ce type d'expérience, et d'autre part, en proposant de nouveaux outils de représentation ne préjugant pas de la nature physique des phénomènes [1][2].

**Le développement de techniques électrostatiques :** différents outils pour varier le dépôt de charge (contact, corona, rouleau...), un banc de cartographie 2D de potentiel, un banc permettant la mesure de la dérive du potentiel d'une isolation polarisée en alternatif après l'ouverture du circuit, des dispositifs de mesure de charge.

**La caractérisation de matériaux et de systèmes par des mesures de potentiel :** ces mesures se sont montrées très bien adaptées pour mesurer les seuils d'injection de charge et la polarisation lente du polypropylène, du polyéthylène, de l'époxy, et d'élastomères silicones. Et la cartographie un bon outil pour localiser des fragilités locales à champ élevé (films polypropylène pour des condensateurs) et observer la progression souterraine de la corrosion sous des systèmes de peinture anticorrosion [3].

**L'animation de la communauté française en Electrostatique, et une réflexion sur l'histoire de cette discipline :** en France, l'Electrostatique apparaît peu comme champ de recherche autonome. La société française d'Electrostatique (SFE) a été fondée en 1997 pour répondre à ce problème, et s'insérer dans un réseau international déjà développé par ailleurs, notamment au Japon et aux Etats-Unis. Nous avons organisé à Supélec en 2008 sa 6<sup>ème</sup> conférence [4], et j'ai eu l'honneur d'être *Guest Editor* du 1<sup>er</sup> numéro spécial de *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation* consacré à l'électrostatique [5]. Par ailleurs, j'ai commencé une activité de recherche en histoire des sciences sur cette discipline, autour de deux axes : le rôle de l'électrostatique dans l'histoire de la radioactivité et du développement de la physique atomique en France, et l'utilisation de l'Electrostatique dans la médiatisation de la science.

## I. Résumé des perspectives

Le projet à court et moyen terme prolonge les quatre axes précédents.

**Développements de modélisations du comportement d'un matériau soumis à une charge électrique :** il s'agit de traduire les nombreuses idées, souvent qualitatives, développées jusque là, en modélisations et traitements mathématiques plus sophistiqués des données. Un projet interne SEEDS est en cours autour de ces thématiques sur l'année 2009-2010. Une collaboration avec le LAPLACE notamment a commencé, ainsi qu'une collaboration contractuelle avec le CNES sur les mécanismes de conduction intervenant lors de la charge d'isolants irradiés en environnement spatial. Il s'agit essentiellement d'une expertise pour l'interprétation de mesures de potentiel réalisées au sol avec les moyens d'essais de l'ONERA. Je participe étroitement à l'encadrement de la thèse de Rachel Hanna (2009-2012) sur ces thématiques.

**Le développement de techniques électrostatiques :** Adrian Mihalcioiu a été embauché au 1<sup>er</sup> juin 2009 pour m'assister comme post-doc sur cet aspect. Il s'agit de maîtriser le contrôle de la température sur nos bancs d'essai (cet aspect thermique entre notamment dans le projet SEFORA), notamment pour développer des techniques de déclin de potentiel thermostimulé. A plus long terme, d'autres développements pourront être envisagés pour profiter de l'avantage intrinsèque aux mesures de potentiel : leur grande stabilité, et la sensibilité de la mesure à la distance de la charge à la masse, et non seulement à son mouvement.

**Caractérisation de matériaux et de systèmes par des mesures de potentiel :** ma participation active aux travaux en cours du groupe « matériaux isolants » du GDR SEEDS sur la *caractérisation d'alumines* doit permettre de corréliser les résultats des mesures effectuées à Supélec avec ceux obtenus par d'autres techniques par les laboratoires partenaires, et confirmer les modèles produits précédemment.

La thèse de M. Hoang Nam Nguyen, financée par l'institut Carnot C3S a commencé en mai 2010 sur le thème *Caractérisation électrique de nanocomposites ferroélectriques innovants pour le stockage ultra-rapide de l'énergie*. Cette thèse s'inscrit dans la perspective du stockage de l'énergie dans de nouvelles générations de supercondensateurs, notamment pour application à la voiture électrique. Elle est co-encadrée avec J.M. Kiat du laboratoire SPMS de l'ECP. Outre un intérêt industriel évident, l'intérêt scientifique de ce projet dans l'optique des thématiques que je développe est d'effectuer des mesures sur des matériaux bien maîtrisés, puisqu'il s'agira de nanocomposites élaborés au SPMS. Des modélisations de conductivité pourront ainsi s'appuyer sur cette compétence « matériau », et permettre d'appuyer les hypothèses sur les phénomènes intervenant à l'échelle nanométrique (piégeage, conduction par sauts, etc.) sur une véritable expertise sur la structure réelle du matériau à cette échelle.

**Animation de la communauté française en Electrostatique :** un réseau vivant existe aujourd'hui en France autour des thématiques d'Electrostatique, mais il souffre notamment d'un manque de visibilité. Les projets dans ce domaine sont de deux ordres. D'une part, la reprise du site web de la SFE, aujourd'hui au point mort. D'autre part, les contacts pris avec le Palais de la Découverte permettent d'envisager la participation à des manifestations grand public. Les travaux historiques menés, qui montrent notamment les connexions de l'électrostatique avec d'autres disciplines (physique nucléaire par exemple) pourront être associés à cette approche.



## II

### **TRAVAUX ET PERSPECTIVES DE RECHERCHE**



## A. L'Electrostatique, une science poussiéreuse ?

MONSIEUR DE SOTENVILLE.

*Comment, mon gendre, vous en êtes encore là-dessus?*

GEORGE DANDIN.

*Oui, j'y suis, et jamais je n'eus tant de sujet d'y être.*

Molière

L'Electrostatique est une science ancienne, dont les lois de base sont bien établies. Aux scientifiques en quête de territoires inexplorés, elle peut sembler moins attrayante que biotechnologies, nanotechnologies, neurosciences... Le grand public, lui, est toujours fasciné par les grandes étincelles et les mystérieuses forces d'attraction, et les ménagères savent bien que, tant qu'il n'y a pas de moyen simple d'empêcher la poussière de coller au mobilier, il reste de la recherche à faire en Electrostatique.

En réalité, les 40 dernières années ont marqué un renouveau intense de cette discipline, impulsé tout d'abord par le développement de nouvelles technologies, comme la xérographie, et par la large diffusion des polymères dans tous les champs de la technologie. Et vers 1970, c'est une série d'explosions dramatiques lors du nettoyage des cuves à l'eau de mer d'une nouvelle génération de superpétroliers qui permit soudain de réaliser que l'électrification statique était très mal comprise. Dans les années qui suivirent, des sociétés scientifiques furent créées (*Electrostatic Society of America, Institute of Electrostatics Japan, European Working Party « Static Electricity in Industry »...*) qui organisèrent des conférences, le *Journal of Electrostatics* fut fondé, et des sondes de mesure se diffusèrent dans le monde entier. Depuis, le besoin social et industriel est resté soutenu, et la recherche s'est largement diversifiée comme en témoigne la variété des thèmes de la 6<sup>ème</sup> conférence de la Société Française d'Electrostatique que nous avons organisé à Supélec en 2008 [4], avec plus de 100 participants venus de 14 pays.

Sont inclus dans le champ de recherche de l'Electrostatique tous les phénomènes qui sont liés à l'accumulation de charge statique et aux champs électriques élevés. En ce sens, l'Electrostatique est très liée aux matériaux isolants électriques. Mais elle s'étend bien au-delà du domaine du Génie Electrique. Elle est impliquée dans les tempêtes de poussières martiennes, et dans le repliement des protéines [6].

Plus que celle de ses lois, la complexité de l'Electrostatique est celle de la matière elle-même. Le champ électrique met en mouvement cette matière. Si elle est gazeuse, liquide ou granulaire (pompes électrohydrodynamiques, séparation électrostatique, contrôle d'écoulements, filtrage, peinture électrostatique...), l'Electrostatique doit être associée à une expertise en mécanique des fluides. Si elle est solide, à une expertise en rhéologie : cela a donné naissance à d'innombrables types d'actionneurs. Inversement, la mesure du champ électrique induit par un petit mouvement de charge est le principe de base des capteurs. Le mouvement de la charge étant intrinsèquement lié à celui de la matière, les techniques électrostatiques permettent également des caractérisations des matériaux.

Dans d'autres cas, l'accumulation de charge est un facteur de risque : la charge par contact ou frottement (triboélectricité) se produit lors du transport de liquides ou de poudres isolants, et l'accumulation de charge d'espace est un facteur critique pour le vieillissement et le claquage des matériaux isolants. C'est le cas en génie électrique, mais pas seulement, comme le montre l'exemple des décharges électriques provoquées sur les satellites par la charge progressive des isolants sous l'action du rayonnement solaire et cosmique.

Les mécanismes de génération, de conduction, de piégeage de la charge sont encore mal compris. Et la poussière adhère toujours au mobilier...





## B. Modélisation dans toutes ses composantes du comportement d'un matériau soumis à une charge électrique

*Par exemple  $\text{div}\vec{D}$  a un sens,  $\text{div}\vec{E}$  ne peut être envisagé et encore moins écrit*

Gérard Fournet, Electromagnétisme

*Ton machin-là, mon bichon, j'y entrave que pouic*

Le lecteur sincère

*La théorie est grise, mon ami, mais l'arbre de la vie est éternellement vert*

Goethe, Faust

### B.1 Contexte scientifique : un éclatement du savoir

Les premières modélisations modernes des propriétés des isolants datent des années 1830, avec d'une part, la description par Faraday de leur capacité à stocker de l'énergie électrostatique, et la naissance du terme *diélectrique*, et d'autre part la découverte par Ohm de sa célèbre loi. Cette séparation par la pensée, sinon dans la réalité, des deux aspects de l'isolant, *stockage de l'énergie* et *rétenion* (ou dissipation progressive) *de la charge*, résumée dans le modèle condensateur-résistance, est restée jusqu'à aujourd'hui la pierre angulaire de la modélisation des isolants, au point que, suivant les périodes et les communautés, on finisse trop souvent par complètement perdre de vue la coexistence des deux aspects.

Dans les années 1980-90 qui ont été celles où j'ai commencé à investir cette discipline par le biais du génie électrique, la mode était (et elle est toujours) à la *charge d'espace*. Alors que depuis très longtemps, comme en témoignent les ouvrages écrits 10 à 20 ans plus tôt [7], on considérait surtout les isolants sous l'angle de leurs propriétés *diélectriques*, on avait découvert que les charges pouvaient pénétrer les isolants solides utilisés dans les installations et semblaient pouvoir jouer un grand rôle dans l'initiation de leur vieillissement. De nombreuses techniques ont vu le jour à la fin des années 1970 et se sont répandues dans les années 1980, visant à donner une image de la répartition volumique de la densité de ces charges injectées, en utilisant la propagation d'une onde de pression dans le matériau (*Laser induced pressure pulse*, LIPP, ou *Pulsed Electro Acoustic*, PEA), ou celle d'une onde thermique (*Thermal Step Method* [TSM], *Laser Intensity Modulation Method* [LIMM]). Une revue déjà un peu ancienne [8] en donne une idée et depuis, d'autres techniques ont été développées qui permettent une cartographie tridimensionnelle de la charge [9].

La modélisation des mécanismes de conduction a accompagné cet essor expérimental, avec le développement des simulations informatiques. Des modèles du parcours de la charge dans le matériau faisant appel à la notion de mobilité modifiée par le piégeage (mobilité effective), soit sous forme de rétenion partielle de la charge, ou de conduction par sauts, se sont développés.

Mais le déplacement des charges d'espace n'est pas pour autant devenu le seul paramètre déterminant la réponse d'un matériau, qui est évidemment, quelque soit la technique utilisée, la somme de différentes composantes. Ce fait est connu depuis longtemps des polyméristes, qui analysent les différentes relaxations du matériau à travers par exemple des techniques de

spectroscopie diélectrique, ou de TSC (courants thermostimulés), qui permettent d'obtenir des ordres de grandeurs des énergies des phénomènes considérés, et de les relier à la structure moléculaire ou à plus grande échelle du matériau [10].

Pourtant, il faut bien constater que les modes (ou *paradigmes*) existent aussi en science et les chercheurs sont souvent prisonniers d'un cadre de raisonnement fixé par la période et le contexte : dans les années 90, on peut dire en forçant le trait, que dans la communauté du Génie Electrique étudiant les propriétés électriques des matériaux isolants, tout signal observé était avant tout le signe d'une *charge d'espace* qui s'injectait...

Une petite illustration en est donnée Figure 1 (qui correspond à la publication la plus représentative du domaine, sur un total d'environ 5000 articles).

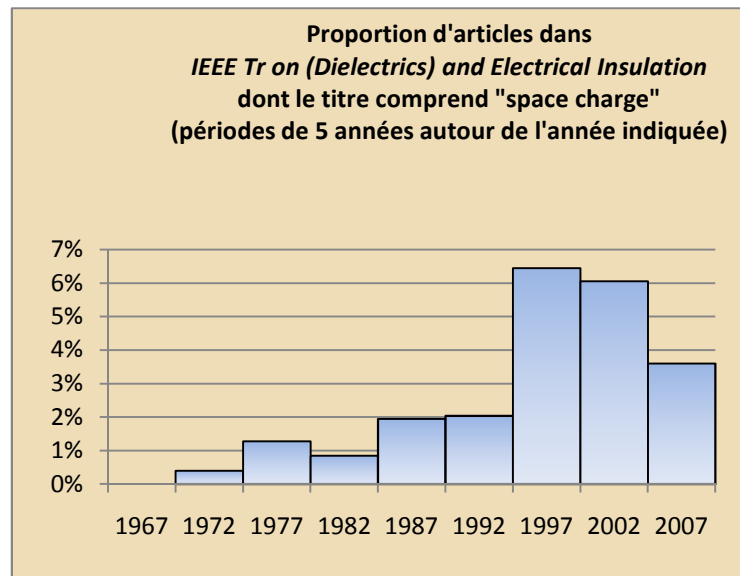


Figure 1 : Statistiques d'occurrence du mot « space charge », IEEE TDEI 1965-2009

Un autre paradigme concernant ces modèles de charge d'espace était la tendance – toujours actuelle sans doute - à la modéliser comme des *électrons*, sautant de pièges en pièges pour traverser le matériau, en transitant par la bande de conduction. Bien plus rarement il était question de conduction *ionique*. En fait, les modèles de conduction adoptés étaient la transcription des modèles développés dans le cadre de la physique du solide des semi-conducteurs, puis des oxydes. Or, les matériaux utilisés en Génie Electrique sont, la plupart du temps, des polymères. Mais quelle est la validité de ces modèles pour des polymères ? En d'autres termes, peut-on utiliser des notions développées en considérant le désordre comme une perturbation d'un réseau fondamentalement ordonné (introduisant des états localisés, venant perturber une structure de bandes d'énergie) à des situations de très grand désordre, avec les multiples possibilités de piégeage que présentent les polymères utilisés en isolation ?

Là aussi, des modèles spécifiques aux polymères existent. Les chimistes utilisent au quotidien le concept d'ion moléculaire. Mais curieusement, il se retrouve rarement dans les modélisations de conduction issues de notre communauté scientifique.

A travers une étude des propriétés électriques d'un matériau industriel (une résine époxy), par des mesures de potentiel de surface, j'ai pris conscience du fait que la charge ne pénétrait dans les matériaux que dans certains contextes, que les modèles les plus répandus n'étaient pas forcément les plus adaptés aux situations expérimentales les plus fréquentes, et qu'il existait un risque – accru par les développements des simulations informatiques - de développer des modèles sophistiqués permettant d'obtenir une bonne adéquation des courbes au modèle, mais de les appliquer de manière complètement erronée. Peut-être à cause du côté très « primitif » de la technique dont je disposais en comparaison à d'autres, avec un signal relativement pauvre en information, et donc susceptible d'interprétations d'autant plus variées, j'ai donc progressivement cherché à développer le recensement le plus large possible de ces possibilités d'interprétation – pour imaginer comment les discriminer dans la pratique.

## B.2 Mesures de courants et mesures de potentiel de surface

### B.2.1 Les deux cas-type

Nous allons nous intéresser ici à des phénomènes électrostatiques, c'est-à-dire variant lentement. Lorsqu'on applique par exemple brutalement un champ électrique continu à un isolant, il présente une réponse transitoire qui peut durer un temps très long avant qu'un régime permanent puisse être atteint. Dans les polymères notamment, des processus de relaxation lents, des mouvements lents de la charge, et un dépiégeage progressif de cette charge dominent habituellement la réponse. On peut considérer que les mesures électriques sur un isolant en régime « temporel » (DC et pseudo-DC) peuvent être séparées en deux cas fondamentaux :

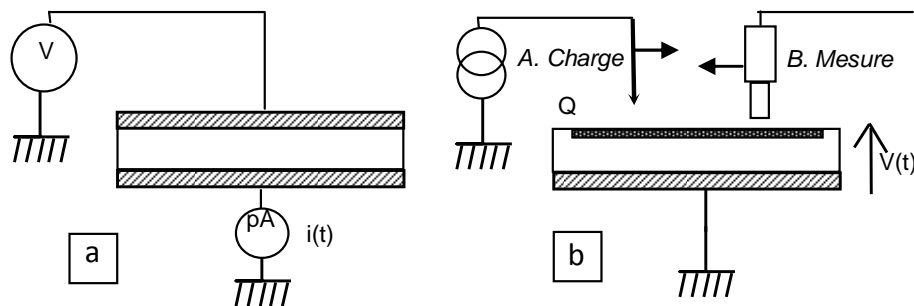


Figure 2 : Mesures électrostatiques

a) mesure de  $i(t)$  à potentiel fixé

b) mesure de  $V(t)$  à charge fixée

- le cas (a) de la Figure 2 où l'environnement intervient en fixant un potentiel constant, et où c'est la réponse de l'isolant qui détermine la charge à ses bornes, est le cas des condensateurs et de la plupart des circuits où l'isolant sert à séparer des conducteurs. On mesure dans ce cas le courant traversant l'isolant.

- le cas (b) de la Figure 2, où l'environnement intervient en fixant la quantité de charge (ou le courant) déposée sur la surface, et où c'est le potentiel qui est déterminé par les propriétés de l'isolant, est le cas le plus répandu lorsque l'isolant n'est pas dans un circuit électrique. On mesure dans ce cas, en imposant un champ nul à la surface de l'isolant, un potentiel de surface.

C'est ce type de mesures auquel nous allons nous intéresser ici. Ces mesures de potentiel ne peuvent généralement pas être effectuées simultanément au dépôt de charge, et on a donc le plus souvent une alternance charge / mesure. On parle de mesures de « déclin de potentiel » si la charge est déposée avant la mesure, et non renouvelée ensuite. Dans un tel cas, on a donc en fait une phase de charge du matériau qui commencera généralement à courant constant (cas b), puis continuera à potentiel constant (passage par le cas a) lorsque la surface sera chargée à un potentiel d'équilibre, et enfin, l'arrêt de cette charge ramènera le montage au cas b.

Pour donner un aperçu des phénomènes transitoires rapides, les mesures de courant pendant la polarisation de l'isolant restent le procédé le plus simple. Pour des phénomènes plus lents (au dessus de la seconde), les mesures de potentiel de surface sont les mieux adaptées, car elles donnent un signal plus stable et moins bruité. La mesure est en effet dépendante de la distance de la charge à la masse, et non de sa variation.

## B.2.2 Théorie générale du déclin de potentiel

### B.2.2.1 Equations électrostatiques de base

En électrostatique, les équations de Maxwell relient le déplacement électrique  $\vec{D}$  ( $\vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P}$ ,  $\vec{E}$  étant le champ électrique et  $\vec{P}$  la polarisation dans l'isolant), la densité de charge  $\rho$  et la densité de courant  $\vec{j}$  en chaque point de l'isolant, par :

$$\text{div} \vec{D} = \rho \quad (\text{équation de Poisson}) \quad [\text{Eq 1}]$$

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \text{div} \vec{j} = 0 \quad (\text{équation de continuité}) \quad [\text{Eq 2}]$$

On peut en déduire que  $\text{div} \left( \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} + \vec{j} \right) = 0$ , c'est-à-dire que le flux de  $\frac{\partial \vec{D}}{\partial t} + \vec{j}$  est conservatif, et

donc égal au courant mesuré dans le circuit extérieur. La grandeur  $\frac{\partial \vec{D}}{\partial t}$  (*densité de courant de déplacement*) exprime les variations de polarisation en un point de l'isolant.

La densité de courant inclue, dans le cas général, plusieurs composantes, comme la diffusion par exemple. Nous ne considérerons ici que le courant de *conduction*, qui est égal à la somme, pour les différents porteurs de charge, du produit du champ électrique par leur mobilité  $\mu_i$  et leur densité  $\rho_i$ :

$$\vec{j} = \left( \sum_i \mu_i \rho_i \right) \vec{E} \quad [\text{Eq 3}]$$

Dans le cas où le matériau présente une certaine *conductivité intrinsèque*  $\sigma$ , on séparera ce terme pour écrire  $\vec{j} = \left( \sigma + \sum_i \mu_i \rho_i \right) \vec{E}$ . La deuxième partie de l'expression est alors relative à une charge non homogène, et souvent injectée par l'extérieur (*charge d'espace*).

En considérant la densité de courant totale (relative aux charges libres et liées), on aura donc :

$$\vec{j}_{\text{total}} = \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} + \left( \sigma + \sum_i \mu_i \rho_i \right) \vec{E} \quad [\text{Eq 4}]$$

Les courants dans un isolant sont donc, si on néglige la diffusion, formés de trois composantes, polarisation dipolaire, conduction intrinsèque, et charge d'espace.

### B.2.2.2 Application aux mesures de potentiel de surface

#### Introduction

On s'intéressera dans la suite uniquement au cas d'un problème à une dimension (condensateur plan de grande largeur par rapport à son épaisseur  $L$ ), ce qui est une bonne approximation pour des essais sur des films ou des plaques isolantes. On oriente l'isolant de la manière représentée Figure 3. Les conditions aux limites, dans ce cas, sont un potentiel nul à la face inférieure de l'isolant, et un champ nul à l'extérieur de l'isolant (cela découle notamment de l'utilisation d'une sonde asservie au potentiel de l'isolant, mais cela reste vrai tant que le champ dans l'air reste négligeable face à celui qui règne dans l'isolant).

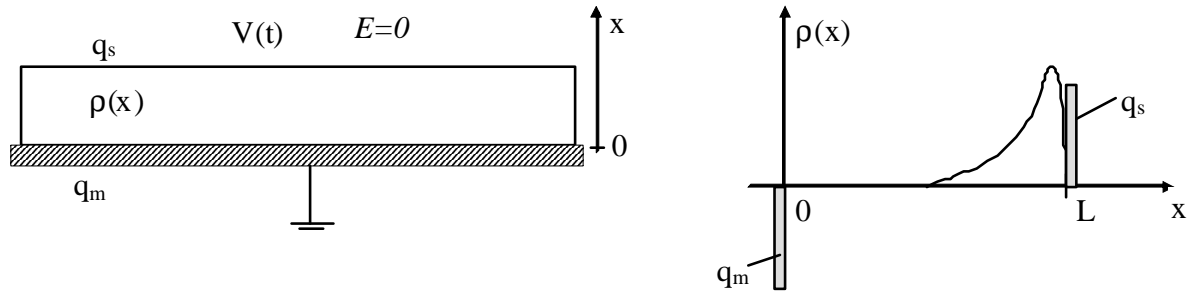


Figure 3 : Injection de charge dans un isolant avec conditions aux limites à champ nul

L'intégration de l'équation [1] (théorème de Gauss) implique alors que le déplacement électrique en chacun des points de l'isolant sera égal à la densité surfacique de charge existant entre ce point et l'extérieur de l'isolant. La distribution de charge étant fixée initialement par l'extérieur, ce sera donc la « grandeur d'entrée » du système.

### **Constitution ou déclin de potentiel dus à la polarisation lente**

En l'absence de phénomènes de conduction, la charge de l'isolant pourra être décrite par :

$$\epsilon_0 \frac{\partial E}{\partial t} + \frac{\partial P}{\partial t} = j_{ext} \quad [\text{Eq 5}]$$

c'est à dire que la montée en potentiel sera<sup>1</sup> :

$$\frac{\partial V}{\partial t} = - \int_0^L \frac{\partial E}{\partial t} dx = - \frac{1}{\epsilon_0} \left( L j_{ext} - \int_0^L \frac{\partial P}{\partial t} dx \right) \quad [\text{Eq 6}]$$

Une partie de la charge appliquée sera donc compensée par les phénomènes de polarisation, et la montée en potentiel sera donc plus lente en présence de l'isolant. Lorsque le courant de charge est interrompu, on est alors en circuit ouvert, et les phénomènes de polarisation lents, s'ils existent, entraîneront un déclin<sup>2</sup> de potentiel donné par :

$$\frac{\partial V}{\partial t} = \frac{1}{\epsilon_0} \int_0^L \frac{\partial P}{\partial t} dx \quad [\text{Eq 7}]$$

Nous reviendrons plus loin sur ce type de modélisation de l'évolution du potentiel (§B.3.5).

### **Déclin de potentiel dû à des effets de conduction**

Dans le cas où la polarisation est stabilisée, elle peut être décrite par une constante diélectrique  $\epsilon$ , et les variations de potentiel mesurées seront alors liés à des effets de conduction. On a alors :

$$\epsilon \frac{\partial E}{\partial t} + \left( \sigma + \sum_i \mu_i \rho_i \right) E = 0 \quad [\text{Eq 8}]$$

Dans le cas où il n'y a pas d'effets de charge d'espace, le champ est homogène, et on a :

$$\frac{\partial V}{V \partial t} = - \frac{\sigma}{\epsilon} \quad [\text{Eq 9}]$$

Ce type de modèle est présenté plus en détails §B.3.6. Le cas où des effets de charge d'espace interviennent est plus compliqué, il est analysé §B.3.7.

<sup>1</sup> Noter qu'ici si  $j$  (ou  $E$ , ou  $P$ ) est orienté vers le bas, alors son signe est négatif, vue l'orientation choisie

<sup>2</sup> Voir note précédente !

***Retour de potentiel***

La conséquence des différents mécanismes évoqués ici est que, si on réalise un court-circuit temporaire de l'isolant, on ramène  $V$  à zéro, mais le potentiel pourra ensuite évoluer :

- Si les mécanismes de dépolarisation lents de l'isolant ne sont pas achevés, l'équation [Eq7] reste valable et entraîne une évolution concomitante du potentiel
- S'il existe une charge d'espace dans le matériau, le champ n'y sera pas nul partout, et cette charge tendra à retourner vers les surfaces

Ces deux causes physiques seront les principales explications du « retour de potentiel » que nous examinons §B.3.5.1 et §B.3.7.1.

### B.3 Déclin et retour de potentiel, une synthèse bibliographique

#### B.3.1 Construction d'une base de données

Un aspect important du travail réalisé à Supélec depuis 1995 est la construction et l'étude d'une base de données la plus large possible des publications ayant pour principal objet des mesures ou des modélisations du déclin de potentiel sur des isolants chargés. Elle s'est appuyée sur un fond initial rassemblé par Roland Coelho dans les années 70 et 80, et s'est nettement développée ; elle comprend aujourd'hui environ 200 articles, et une synthèse de cette bibliographie a été publiée en 2005 [2].

L'analyse de cette base de données a suivi plusieurs axes : le contexte industriel, les modes de charge utilisés, les sondes de mesure, les matériaux étudiés, les modèles du déclin, et les développements de la technique. Nous allons en présenter ici la synthèse, dans laquelle nous incluons certains apports de modélisation issus de nos travaux à Supélec (notamment dans les §B.3.5.2 et §B.3.7.4). L'essentiel de la description de ces travaux se trouve cependant dans la partie C.

#### B.3.2 Contexte industriel

Il est apparu que trois domaines industriels principaux ont été les moteurs du développement des études les plus marquantes.

##### B.3.2.1 Le développement des systèmes de copie et d'impression électrostatique

Depuis l'invention originale de Chester Carlson en 1939, et surtout depuis 1950, de nombreux travaux théoriques et expérimentaux ont été impulsés pour résoudre les problèmes posés par la mise au point des photocopieurs et des imprimantes laser. Cela explique que des articles fondamentaux sur les mécanismes de dépôt de charge corona, d'injection de charge, ou sur la dynamique du déclin de potentiel aient été produits par les laboratoires de recherche d'IBM [11], Xerox [12] [13] ou Kodak [14]. Et notamment, une série de modélisations du déclin de potentiel dû à des mécanismes de transport dans des matériaux désordonnés (photo-conducteurs, mais pas seulement), dans lesquels on introduit le piégeage, qui a ensuite abouti aux modèles de transport dispersif et de type « thermodynamique » que nous présentons §B.3.7.3.

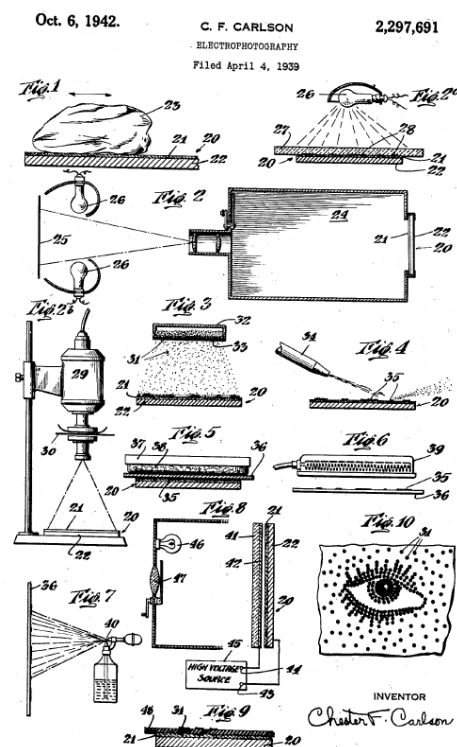


Figure 4 : Xerographie (le brevet de l'invention, 1939)



### B.3.2.2 Les électrets

La possibilité de stocker des charges pendant une durée quasiment illimitée dans les matériaux isolants a été exploitée pour développer les dispositifs les plus variés, notamment en électroacoustique. Pour mettre au point ces *électrets*, la charge et le potentiel de surface ont été étudiés ici, souvent d'un point de vue opposé au précédent, qui était d'augmenter la stabilité temporelle de la charge piégée. Ces équipes (notamment celle de Darmstadt [15] [16] [17] et de Sao Paulo [18][19][20][21]) se sont donc plus concentrées sur les aspects constitution de la charge et piégeage que sur les mécanismes de déclin de potentiel, même si elles en ont publié plusieurs modélisations (par exemple [15][20] pour le PTFE, ou [16] pour le  $\text{SiO}_2$ ). Elles ont développé des dispositifs de charge originaux.

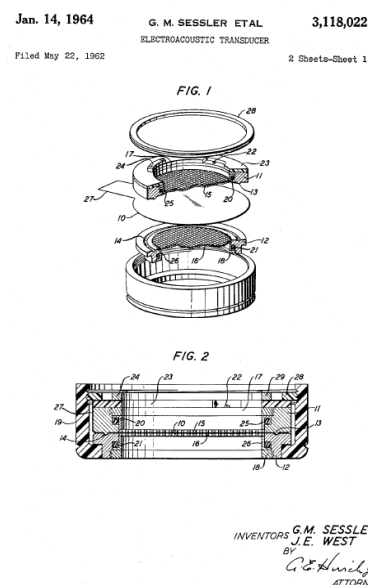


Figure 5 : Brevet « historique » du microphone à électrets (Sessler – West 1964)

### B.3.2.3 Les systèmes d'isolation du Génie Electrique

Le développement des isolations polymériques, pour les câbles notamment, a été une autre source de travaux sur le potentiel de surface, au Japon (notamment à Nagoya [22][23][24]), en France (à Supélec, [25][26][27][28][29] [31]) ou au Canada [32][33][34][35][36]. Un résultat important doit être mentionné, qui a eu une influence importante sur la modélisation : l'observation, publiée par Ieda en 1967 [22], que, sur le polyéthylène, dans certaines circonstances expérimentales, les courbes de déclin de potentiel obtenues pour différents niveaux de charge initiaux se croisaient (« cross over »).

Ce phénomène du *cross-over* a été l'objet de nombreux travaux, et il a excité l'imagination des théoriciens [21] [25] [32][37][38]. L'explication la plus convaincante est venue en définitive de Perlman et de son équipe au Québec [34].

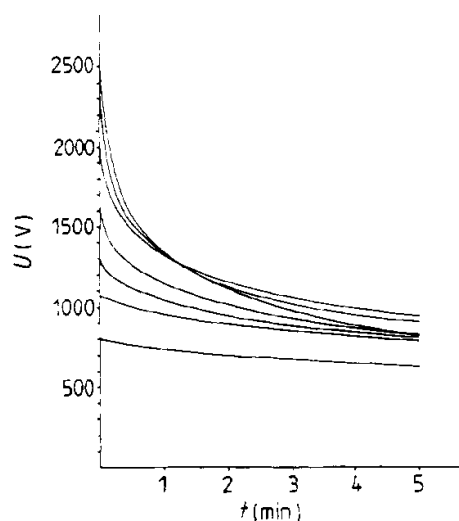


Figure 6 : *Cross-over* des courbes de déclin de potentiel [37]

Le suivi du vieillissement des isolations imprégnées des transformateurs de puissance et des câbles peut être effectué, quant à lui, par la mesure du *retour de potentiel* qui apparaît en circuit ouvert après une polarisation longue en continu, puis un court-circuit temporaire. On observe que la valeur de ce retour de potentiel est très sensible sur ce type d'isolations à la quantité d'humidité qu'elles contiennent, et donc est un indicateur de vieillissement utile [39][40]. Ce type de besoin industriel a également donné naissance à des modélisations du déclin et du retour de potentiel basées sur une composante à très basse fréquence de la permittivité diélectrique [41].

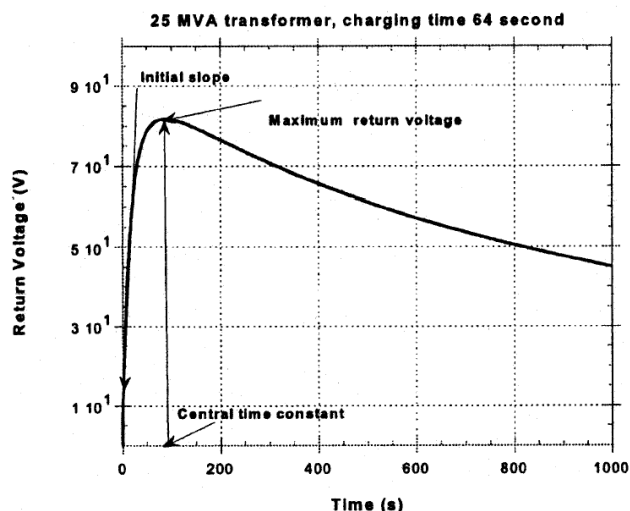


Figure 7 : Allure typique du retour de potentiel sur un transformateur vieilli [39]

### B.3.3 Dispositifs de charge

Les principaux procédés de charge d'un isolant sont le contact (liquide, ou solide), la décharge couronne, ou le faisceau d'électrons. Dans le cas d'un faisceau d'électrons, la charge est directement injectée, avec une certaine énergie, dans le volume du matériau, et son parcours dépend ensuite des propriétés de piégeage du matériau.

Dans le cas d'un contact, la charge est par contre déposée dans des états de surface du matériau. Dans le cas de la décharge couronne, la charge est déposée sous forme d'ions positifs ou négatifs, et va également être transférée, par des mécanismes qui ont été étudiés sur le sélénium [13] ; ce transfert de charge, trou ou électron, dans les niveaux de surface de l'isolant, peut impliquer des mécanismes Auger en positif (et créer une paire électron trou supplémentaire). Mais, que ce soit par contact ou corona, les états de surface sont habituellement des pièges profonds dans la bande interdite de l'isolant (Figure 8), donc il faudra fournir une énergie d'activation pour injecter la charge dans les états électroniques du volume. Nous y reviendrons §B.3.7.4.

Expérimentalement, on sait effectivement depuis longtemps que le déclin de potentiel peut dépendre du mode de charge, et pas simplement de la quantité de charge déposée, ce qui témoigne du rôle de ces phénomènes énergétiques dans l'injection de charge. Une publication de 1968 par Ieda [23] montrait déjà, par exemple, que le dépôt d'une peinture conductrice sur un film de polyéthylène ralentit le déclin après charge par corona. L'effet injecteur de la décharge corona a été cependant surtout mis en évidence par une équipe de Bangor en 1977 [42], et ce sont finalement des travaux réalisés ensuite dans l'équipe de Perlman au Québec qui ont montré que ce sont les neutres de la décharge corona négative [35] et notamment, les oxydes d'azote activés [36], qui jouent le rôle d'injecteurs.

Rappelons également que, même en l'absence de cette activation par la décharge couronne, une injection de l'électron piégé sous forme d'ion moléculaire n'est nullement exclue. C'est même un

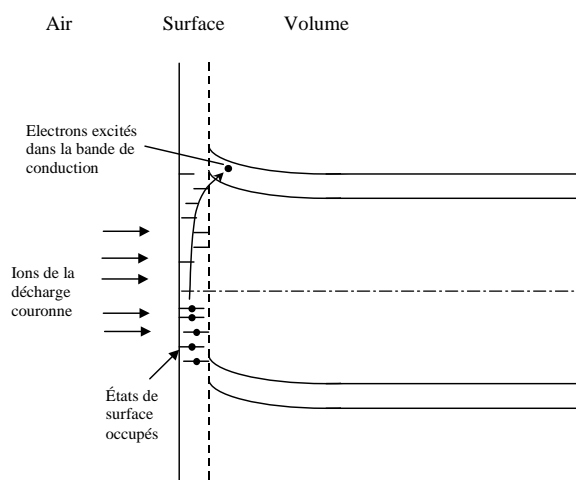


Figure 8 : Modèle d'injection des électrons activés par la décharge couronne et le champ électrique

phénomène très probable dans les polymères. Sur le plan expérimental, l'étude de la formation de la charge dans divers matériaux a été étudiée dans le détail par les équipes qui travaillent sur les électrets [17][21], suite notamment au développement, dans les années 70, des triodes à courant constant par Moreno et Gross [18][19]. Des études récentes menées dans ce domaine des électrets ont cherché à évaluer le lien entre la stabilité de la charge et la chimie de la surface chargée par corona. Il apparaît notamment que la teneur en oxygène de la surface est nettement renforcée en polarité négative, et diminuée en positif [43]. Cela peut avoir une influence à la fois sur les propriétés d'injection et sur les propriétés de polarisation du matériau.

### B.3.4 Sondes de mesure

#### B.3.4.1 Voltmètres électrostatiques

Les sondes utilisées dans les voltmètres électrostatiques sont le plus souvent « à condensateur vibrant » (sondes de Kelvin-Zisman). Par différents moyens, on réalise une variation à fréquence connue de la surface utile (ou de la position) d'une électrode, ce qui engendre un courant induit si le champ vu par cette électrode n'est pas nul. Un dispositif d'asservissement permet de faire varier le potentiel de l'électrode de manière à annuler ce courant, et donc le champ en face d'elle.

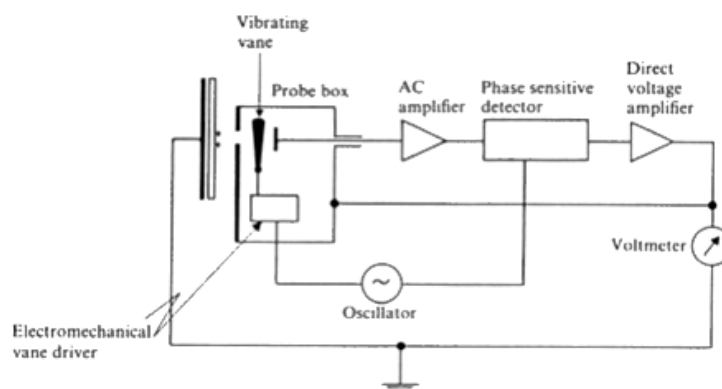


Figure 9 : Principe de la sonde à condensateur vibrant

Si elle est placée en face (et à courte distance) d'une surface, isolante ou conductrice, la mesure du potentiel appliqué à l'électrode donnera celui de cette surface.

Ces sondes ont l'avantage de faire une mesure absolue du potentiel, avec une perturbation minimum de la surface. Elles sont issues des voltmètres électrostatiques développés par Robert E. Vosteen à partir de 1955, essentiellement pour permettre à la société Xerox de mettre au point des systèmes de photocopie basée sur la photoconduction du sélénium, et qui furent ensuite vendus dans le monde entier sous la marque Monroe Electronics. Divers développements ont été réalisés depuis, notamment à partir du microscope à force atomique, des sondes de Kelvin « locales » permettant la cartographie de potentiel avec une résolution maximum de l'ordre de 10 nm [44][45]. Le microscope de type KFM (*Kelvin probe force microscopy*) permet d'analyser la surface par une double boucle de contrôle, l'une de la distance sonde-surface, l'autre de minimisation du champ vu par la sonde.

#### B.3.4.2 Sondes capacitives

Les sondes capacitives, plus simples dans leur principe, sont formées d'un conducteur sur lequel une charge d'influence est mesurée. Elles ont l'inconvénient par rapport aux précédentes de fournir une mesure du champ vu par la sonde, et non une mesure absolue du potentiel, et donc le signal enregistré dépend de la distance de la sonde à la surface. Un autre inconvénient est l'existence même de ce champ, qui peut perturber le phénomène à étudier.

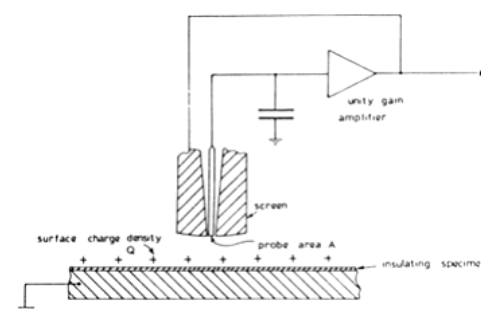


Figure 10 : sonde capacitive (d'après Davies)

C'est cependant en utilisant ce type de sonde que les premières cartographies de potentiel avec une résolution de l'ordre de 80  $\mu\text{m}$  ont été effectuées par l'équipe du laboratoire de Bangor (Pays de Galles) dans les années 70 [42][46][47]. Il est en effet plus facile de produire des électrodes de petit diamètre avec ce principe.

### B.3.4.3 Moulins à champ

Les moulins à champ sont également parfois utilisés. Ils représentent un développement des sondes capacitatives, pour des surfaces de mesure large, qui permet d'éviter la dérive inévitable des sondes capacitatives (qui mesurent des variations de champ et non le champ lui-même) en fournissant une référence périodique de champ nul par le mouvement de rotation d'une électrode en forme d'étoile derrière une électrode à la terre ajourée de la même manière.

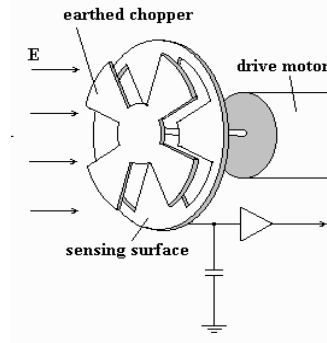


Figure 11 : Moulin à champ (d'après Chubb)

### B.3.4.4 Faisceaux d'électrons

Pour procéder à la mesure du potentiel après implantation de charges dans un isolant par le faisceau d'électrons d'un microscope électronique à balayage, on peut utiliser un faisceau d'électrons peu énergétiques parallèle à cette surface [48]; on peut aussi utiliser la méthode du « miroir électrostatique » dont l'aspect mesure du déclin de potentiel est étudié en détail dans [49].

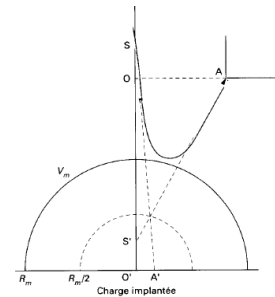
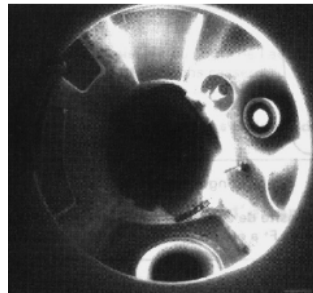


Figure 12 : Image miroir et son principe (d'après Le Gressus)

Cette technique nécessite des moyens expérimentaux plus importants, mais a été utilisée notamment pour des études sur les oxydes et les céramiques. Elle se fonde sur le fait qu'à partir d'un certain potentiel de surface, les électrons d'un faisceau de faible énergie seront repoussés par l'isolant. L'image observée alors par le MEB est celle du canon à électrons, avec un diamètre dépendant de ce potentiel.

## B.3.5 Modélisations par polarisation dipolaire

### B.3.5.1 Théorie générale

#### Fonctions d'absorption

La relaxation diélectrique de la plupart des isolants, notamment des polymères, comporte une composante à très basse fréquence, liée à la fois aux réorganisations moléculaires internes, et à des phénomènes de polarisation interfaciale complexes. En régime linéaire, on peut modéliser cette réponse par des fonctions diélectriques  $\phi_D(t)$  et  $\phi_E(t)$  établissant des relations de convolution entre le déplacement électrique et le champ [50]:

$$\text{a. } D(t) = \varepsilon_0 \int_{-\infty}^t E(\tau) \phi_D(t - \tau) d\tau \quad \text{b. } E(t) = \frac{1}{\varepsilon_0} \int_{-\infty}^t D(\tau) \phi_E(t - \tau) d\tau \quad [\text{Eq 10}]$$

Pour un diélectrique homogène d'épaisseur  $L$ , chargé uniquement en surface (on suppose également la conductivité du diélectrique nulle), le champ électrique sera constant dans l'isolant,

et relié au potentiel par  $E = -V/L$ . Le déplacement sera, lui, égal à la densité  $q$  de charge libre sur la surface.

### **Courant d'absorption**

Dans le cas de l'application à  $t=0$  d'un créneau de potentiel ( $V(t) = \Gamma_0(t)V_0$ ), on déduit de [Eq10a] le *courant d'absorption* de l'isolant, proportionnel à  $\phi_D(t)$  selon :

$$i(t) = S \frac{dD}{dt} = \frac{\epsilon_0 S V_0}{L} \frac{d}{dt} \int_0^t \phi_D(\theta) d\theta = C_0 V_0 \phi_D(t) \quad [\text{Eq 11}]$$

( $S$  étant la surface de l'isolant, et  $C_0$  sa capacité géométrique)

### **Déclin de potentiel par absorption (polarisation)**

Dans le cas du dépôt à  $t=0$  d'une quantité de charge  $q_0$  sur la surface ( $q(t) = \Gamma_0(t)q_0$ ), on déduit de [Eq10b] la vitesse de *déclin du potentiel de surface* :

$$\frac{dV(t)}{dt} = -\frac{1}{L} \frac{dE}{dt} = -\frac{Lq_0}{\epsilon_0} \frac{d}{dt} \int_0^t \phi_E(\theta) d\theta = -\frac{Lq_0}{\epsilon_0} \phi_E(t) \quad [\text{Eq 12}]$$

La dérivée du potentiel est proportionnelle à la fonction d'absorption  $\phi_E(t)$ . Si on considère le potentiel<sup>3</sup>  $V_0^*$  qui correspond à la charge de la capacité géométrique avec la charge  $q_0$ , on pourra écrire [Eq. 12] de la manière :

$$\frac{dV(t)}{dt} = V_0^* \phi_E(t) \quad [\text{Eq 13}]$$

Les fonctions  $\phi_D(t)$  et  $\phi_E(t)$  ne sont pas indépendantes, il découle de [Eq10] que le produit de leurs transformées de Laplace vaut 1, et donc il existe un lien entre la forme du déclin de potentiel à charge fixée, et celui du courant d'absorption à potentiel constant. Le calcul rigoureux de l'un à partir de l'autre nécessite d'effectuer une transformée de Laplace inverse, ce qui n'est pas toujours aisé. Nous avons montré qu'il existe une solution analytique approchée dans le cas d'une fonction en loi de puissance (§B.3.5.2).

### **Retour de potentiel par résorption (dépolarisation)**

Les phénomènes dipolaires décrits par une fonction diélectrique sont linéaires en fonction de la valeur et du signe du potentiel ou de la charge appliqué. Les effets produits lors de l'expérience de dépolarisation, en courant (mesure du courant de court-circuit) ou en potentiel (retour de potentiel), sont donc aisés à prévoir à partir des résultats de l'expérience de polarisation. La théorie générale du retour de potentiel lié à cette résorption a été établie par Gross [51], et d'autres modèles plus récents peuvent se trouver dans la bibliographie [41].

Si on considère un isolant chargé à l'instant  $t=0$  avec une charge  $q_0$ , puis neutralisé de manière également instantanée à l'instant  $t_n$  par le dépôt d'une charge  $q_n$  de signe opposé à  $q_0$ , [voir figure] l'évolution du potentiel après la neutralisation est donnée, en régime linéaire, par la superposition du signal lié au dépôt initial et de celui induit par le créneau de neutralisation :

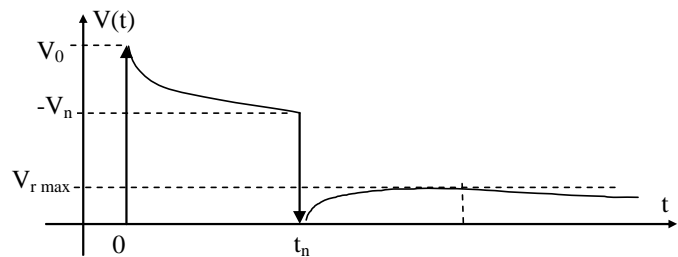


Figure 13 : Déclin et retour de potentiel

<sup>3</sup> Attention, il n'est généralement pas accessible à l'expérience, car la première valeur de potentiel mesurée (notée habituellement  $V_0$ ) correspond à une situation où de multiples composantes rapides (électroniques, atomiques, dipolaires) sont déjà polarisées.

$$\frac{dV(t)}{dt} = \frac{Lq_0}{\varepsilon} \phi_E(t) + \frac{Lq_n}{\varepsilon} \phi_E(t - t_n) \quad [\text{Eq 14}]$$

$\phi_E(t)$  étant une fonction (en valeur absolue) décroissante du temps, le deuxième terme, de signe opposé au premier, l'emportera généralement pour les petites valeurs de  $t - t_n$ , entraînant une évolution de  $dV/dt$  opposée à l'évolution initiale, donc un retour de potentiel. Puis, au bout d'un temps suffisamment long, le premier terme l'emportera à nouveau, la valeur de  $q_0$  étant plus élevée, en valeur absolue, que celle de  $q_n$ .

Le retour de potentiel passera donc par un maximum. Ensuite, pour des temps longs par rapport à  $t_n$ , la réponse de l'isolant se rapprochera de celle qu'il aurait eu s'il avait été soumis à un créneau de charge  $q_0 + q_n$ .

### B.3.5.2 Un cas particulier : fonction d'absorption en lois de puissance

#### Introduction

Pour des raisons étudiées en particulier par Jonscher [52], les fonctions diélectriques dans la matière condensée sont composées de lois de puissance, selon la figure suivante (la fonction  $f_J$  représentée est égale à  $\phi_D$  pour  $t > 0$ ).

Les courants d'absorption suivront dans ce cas une ou plusieurs (suivant le nombre de décades enregistrées), lois de puissance.

Quelle conséquence pour le déclin de potentiel ? La courbe  $\log \phi_E(t) = f(\log t)$ , et donc le déclin de potentiel, en représentation  $\log(dV/dt) = f(\log t)$ , sera également composée d'un ou deux segments de droite, mais avec des pentes différentes de  $\log \phi_D(t) = f(\log t)$  ou du courant d'absorption.

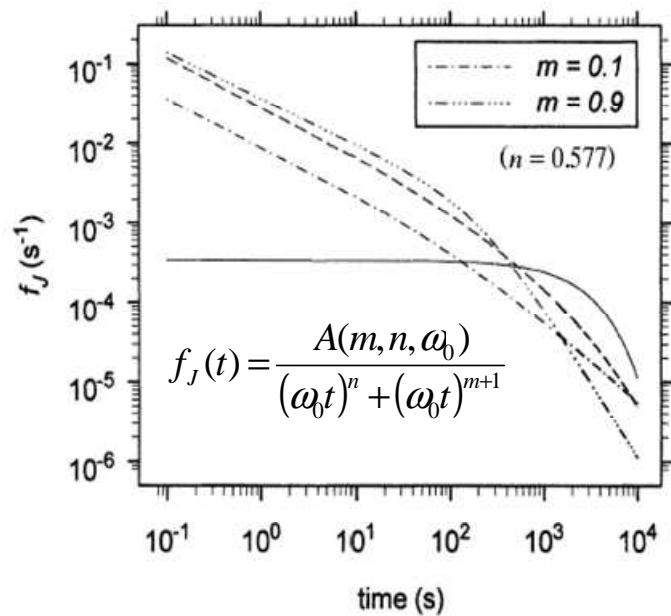


Figure 14 : Fonctions de réponse de Jonscher [53]

#### Calcul analytique du lien entre courants d'absorption et déclin de potentiel

Dans de nombreux cas pratiques de mesure, on trouve que la dérivée du déclin de potentiel suit une loi de puissance unique, c'est-à-dire :

$$\frac{(dV/dt)_t}{(dV/dt)_{t_0}} = \left( \frac{t}{t_0} \right)^{-n} \quad \text{ou} \quad \left| \frac{\phi_E(t)}{\phi_E(t_0)} \right| = \left( \frac{t}{t_0} \right)^{-n} \quad [\text{Eq 15}]$$

$n$  étant compris entre 0,5 et 1

Ce type d'expression, que l'on retrouve aussi pour les courants (loi de Curie<sup>4</sup>-Von Schweidler), ne peut pas être valable jusqu'à des temps infinis, car son intégrale n'est pas finie. Elle est malgré tout une bonne approximation pour les temps « courts » - qui peuvent durer pour bien des isolants jusqu'à plusieurs jours de mesure.

Nous avons [27] montré que dans ce cas, le calcul analytique approché du courant d'absorption à partir du déclin de potentiel était réalisable : si on applique un indice 1 à l'expérience de déclin

<sup>4</sup> Ce n'est ni de Marie ni de Pierre, mais bien de Jacques Curie qu'il s'agit ! (voir article en annexe)

de potentiel, et un indice 2 à celle de mesure de courant, le lien entre les deux expériences est le suivant, dans cette approximation des temps « courts » :

$$i_2(t) = -\frac{V_{20}}{V_{10}} C_{\infty} v_1'(t) \quad [\text{Eq 16}]$$

$V_{10}$  étant le potentiel appliqué lors de la mesure de courant, et  $V_{20}$  étant le potentiel après la polarisation des composantes instantanées et rapides correspondant à une capacité  $C_{\infty}$ . Si on met cette équation en regard de la théorie générale explicitée plus haut, cela signifie tout simplement qu'on a pour les temps courts la même expression pour  $\phi_D(t)$  et  $\phi_E(t)$ .

Ce résultat est relativement logique si on considère que l'orientation dipolaire obéit dans les deux cas à la même contrainte, pour deux situations où on a appliqué le même champ initialement, tant que l'on peut considérer que ce champ n'a pas encore été écranté de manière significative par la polarisation. Ensuite, le champ vu par un dipôle dans le matériau sera plus faible dans le cas de l'expérience de déclin de potentiel, faute de renouvellement de la charge de surface.

### **Calcul du retour de potentiel à partir du déclin de potentiel**

Dans le cas considéré ci-dessus, et plus largement, la décroissance rapide de  $\phi_E(t)$  permet de simplifier [Eq14], pour un temps court après la neutralisation :

$$\frac{dV(t)}{dt} = \frac{Lq_0}{\varepsilon} \phi_E(t) + \frac{Lq_n}{\varepsilon} \phi_E(t-t_n) \approx \frac{Lq_n}{\varepsilon} \phi_E(t-t_n) = V_n \phi_E(t-t_n) \quad [\text{Eq 17}]$$

Comme le déclin de potentiel initial s'exprimait par  $\frac{dV(t)}{dt} = \frac{Lq_0}{\varepsilon} \phi_E(t) = V_0 \phi_E(t)$ , on en déduit que, pour les temps courts après la neutralisation :

$$\frac{dV(t)}{V_n dt} \approx \frac{dV(t-t_n)}{V_0 dt} \quad [\text{Eq 18}]$$

C'est-à-dire que la première partie de la courbe de retour de potentiel a un aspect identique (mais « retourné ») à la courbe de déclin de potentiel.

Dans le cas (fréquent dans les solides isolants) où, dans un grand intervalle de temps, est vérifiée la relation [Eq15], on peut calculer également dans le cadre du modèle linéaire le temps où le retour de potentiel atteint son maximum. Il est obtenu pour  $V_0 \phi_E(t) + V_n \phi_E(t-t_n) = 0$  c'est-à-dire

pour  $\frac{V_0}{V_n} = -\left(\frac{t-t_n}{t}\right)^{-n}$  c'est à dire pour :

$$t-t_n = t_n \frac{1}{\left(-\frac{V_0}{V_n}\right)^{\frac{1}{n}} - 1} \quad [\text{Eq 19}]$$

## **B.3.6 Développements de modélisations par conduction intrinsèque**

### **B.3.6.1 Introduction**

L'existence d'une conduction intrinsèque  $\sigma$  entraîne un écrantage de toute charge nette présente dans le matériau, car l'équation de continuité [Eq2] s'écrit ici  $\frac{\partial \rho}{\partial t} + \sigma \text{div} \vec{E} = 0$ , ce qui donne :

$$\frac{d\rho}{\rho dt} = -\frac{\sigma}{\varepsilon} \quad [\text{Eq 20}]$$

Une conductivité intrinsèque constante doit donc donner naissance, non seulement à un déclin de potentiel exponentiel (§B.2.2.2), mais également à un déclin exponentiel de toute densité de charge présente dans le matériau, avec une constante de temps égale au quotient de sa permittivité par sa conductivité. La conduction intrinsèque ne donnera naissance à aucun retour de potentiel. Une différence marquée entre l'ampleur du déclin et celle du retour peut être un indice de cela (ce n'est pas la seule hypothèse possible).

La conduction intrinsèque est pratiquement nulle à température ambiante et champ modéré pour la plupart des polymères utilisés en isolation, qui présentent un grand gap et surtout une mobilité effective des porteurs extrêmement faible. Les observables mesurés dans ce cas seront avant tout d'origine dipolaire, ou liés à une charge d'espace injectée. L'apparition d'une conduction intrinsèque volumique nécessite la génération d'une certaine quantité de porteurs mobiles, avec un renouvellement qui compense les recombinaisons.

### **B.3.6.2 Génération des porteurs de charge**

Seule l'irradiation sera suffisamment énergétique pour permettre la création de paires électron-trou par saut de la bande interdite. Des modèles de RIC (*radiation induced conductivity*) ont été développés, et appliqués au cas du déclin de potentiel pour rendre compte des résultats obtenus sur des polyimides irradiés par rayonnement gamma [54], ou sur des matériaux photoconducteurs utilisés pour la xérogaphie [11]. Ce dernier modèle est cependant plus proche des modèles d'injection de charge décrits plus loin dans la mesure où il suppose que la lumière ne pénètre que dans une couche de faible épaisseur de l'isolant, où des paires électron-trou sont générées, dont les constituants se déplaceront de manière opposée dans le matériau, les uns neutralisant la charge de surface déposée, les autres s'injectant dans le matériau pour se neutraliser à la contre électrode.

Pour des isolants présentant essentiellement des pièges peu profonds, ou, pour des polymères à température ou à champ élevés, le dépiégeage thermique d'une partie de la charge piégée dans le matériau peut conduire à une certaine conductivité intrinsèque. Ce processus, décrit par la loi de Poole-Frenkel, se manifeste par une conductivité proportionnelle à l'exponentielle de la racine carrée du champ électrique, divisée par  $kT$ . Des modèles du déclin de potentiel par ce type de conduction ont été également élaborés [55].

Nous verrons dans nos travaux un cas où une modélisation par conduction a été retenue (§D.2.4), et un exemple de situation où il faut modéliser la RIC (§D.6.2.1).

### **B.3.6.3 Recombinaison des porteurs**

Le libre parcours des électrons et des trous est toujours réduit dans les matériaux désordonnés utilisés en isolation. Ils vont donc être piégés, mais ne disparaîtront pas pour autant. Avec le temps un double mouvement va se produire : leur mobilité effective va diminuer (car leur profondeur moyenne de piégeage va augmenter, voir §B.3.7.2), et une partie d'entre eux va se recombiner, soit entre eux, soit aux électrodes. C'est la raison pour laquelle la conductivité va diminuer si on arrête à un instant donné la génération des porteurs, mais le processus sera progressif. C'est ce qu'on appelle la DRIC (*delayed RIC*).

Un modèle assez original de déclin de potentiel a été établi par Malecki [56] pour expliquer la grande stabilité du potentiel des électrets préparés avec du Téflon FEP, basé sur l'épuisement des porteurs de charge assisté par le champ. Ce phénomène doit être observé lorsque le temps moyen de transit des porteurs de charge est inférieur au temps de renouvellement de la conductivité par génération de porteurs. Dans ce cas l'évacuation de la charge de l'isolant sera déterminée au bout d'un certain temps par le phénomène externe générant les porteurs seulement (rayons cosmiques, par exemple), et la vitesse de déclin augmentera alors linéairement avec l'épaisseur de l'échantillon, et tendra vers une constante sur les longues périodes (mois ou années).



### B.3.6.4 Conduction de surface

En raison de leur faible conduction volumique, la conduction de surface prédomine souvent sur les isolants. Un certain nombre de modélisations publiées du déclin de potentiel intègrent donc ce paramètre, par exemple pour rendre compte du comportement d'isolateurs vieillissants en présence d'humidité [57]. En général, dans ce cas, la composition de la couche de surface conductrice impliquée est très différente de celle du matériau de départ. Il existe cependant certains matériaux, comme le PET, sur lesquels un véritable étalement latéral de la charge a été observé, sans qu'on puisse l'attribuer à une altération de la surface [46] (voir §D.3).

Il existe d'autres cas spécifiques, par exemple celui des isolateurs dans les postes de transformation [58], ou celui de certains électrets considérés sur des périodes de temps longs [59], pour lesquels des modèles sophistiqués de conduction de surface ont été développés, notamment des modèles de percolation. Mais ces domaines n'ont pas été étudiés en détail dans nos travaux.

### B.3.7 Développements de modélisations par injection

De nombreux modèles concernant l'injection et le transport d'une charge d'espace dans un matériau ont été développés. On peut schématiquement répartir ces modèles en quatre groupes, suivant la manière dont les propriétés du matériau et des interfaces sont prises en compte dans l'injection et le transport des charges. Les trois premiers groupes sont des modèles dans lesquels on suppose que la dynamique est fixée par le volume du matériau, alors que pour le quatrième, ce sont les interfaces.

#### B.3.7.1 Modèles électrostatiques

##### Définition

Ce sont les modèles qui ne prennent pas en compte l'influence du piégeage et du dépiégeage de la charge, et qui considèrent donc le transport uniquement par la valeur d'une mobilité  $\mu$  : le mouvement de la charge ( $\vec{v} = \mu \vec{E}$ ) ne dépend que du champ électrique en ce point, et pas des caractéristiques du matériau.

##### Description par plans de charge

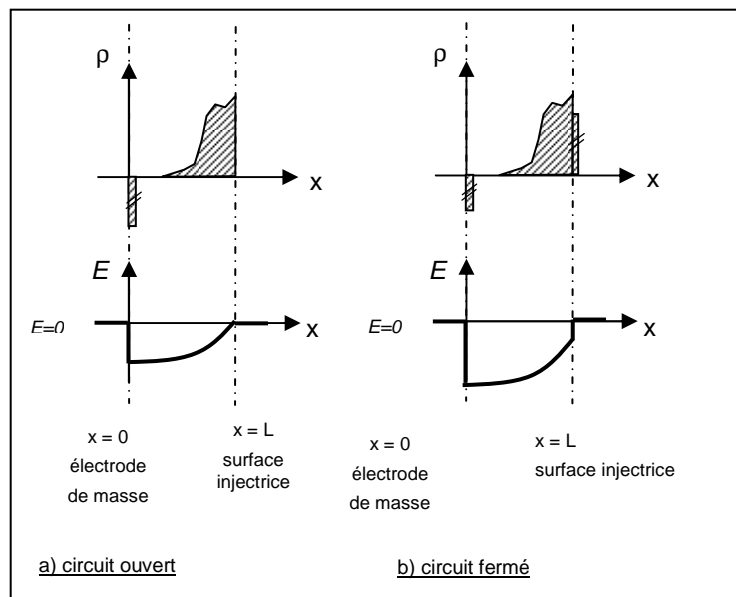


Figure 15 : Densités de charge et champ

Dans le cas de mesures de courant à potentiel constant (cas *a* de la Figure 2 et *b* de la Figure 15), le champ moyen dans l'isolant est fixé par l'extérieur, mais pas le champ en chaque point, qui va dépendre de la charge d'espace présente dans le matériau. Le champ sera plus faible, voire nul, dans l'isolant au voisinage de l'électrode injectrice. Cet abaissement a pour corollaire une élévation du champ – et donc de la charge image – sur l'électrode de masse : une mesure de courant sur cette électrode y détecte donc le mouvement de la charge dans le volume du matériau.

Le régime transitoire à la mise sous tension sera caractérisé par une rapide montée du courant pendant la phase d'injection, puis par une baisse du courant traduisant la diminution de cette injection liée à la baisse du champ à l'électrode injectrice. En régime permanent, on observera un régime caractéristique de courant limité par charge d'espace (SCLC), qui sera proportionnel au carré de la tension appliquée.

Dans le cas du déclin de potentiel (cas *b* de la Figure 2 et *a* de la Figure 15), avec un champ nul à l'extérieur de l'isolant, si on considère la distribution de charge comme des plans s'injectant successivement dans le matériau, chaque plan de charge subit un champ constant durant sa dérive, proportionnel à la quantité de charge qui le sépare de la surface (théorème de Gauss). Il se déplacera donc à vitesse constante, proportionnelle à cette quantité ; la distribution s'élargira donc progressivement, de manière homothétique. Ce type de modèle, développé en détails par Batra [11], prévoit notamment une vitesse de déclin du potentiel  $dV/dt$  constante jusqu'au transit complet du premier plan de charge. On retrouve pour cette vitesse initiale comme pour le courant dans le cas précédent une dépendance quadratique en fonction de la charge déposée.

Nous avons réalisé il y a quelques années une simulation numérique 1D du déclin de potentiel, donnée sur la Figure 16, en supposant que les charges déposées sur la surface s'injectent à partir de l'instant  $t=0$  dans le matériau, avec une mobilité constante.

On vérifie bien sur cet exemple que la distribution de charge est déformée de manière homothétique, comme le prévoit la théorie.

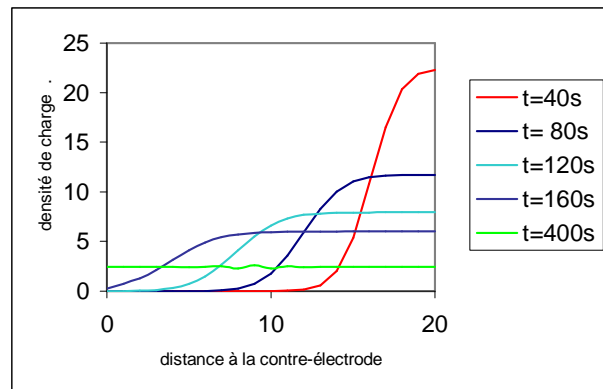


Figure 16 : Simulation de l'injection de charge lors du déclin de potentiel [30]

On peut remarquer également que la charge image sur l'électrode de masse reste constante jusqu'au transit complet du premier plan de charge (influence électrostatique de la distribution de charges sur le plan de masse totale). Une mesure de courant sur l'électrode de masse ne détectera donc pas le mouvement des charges, contrairement au cas précédent, où l'influence électrostatique est partagée entre les deux électrodes, et se répartit avec la dérive de plus en plus au profit de l'électrode de masse.

Ce type de modèles a été développé par Wintle [32], en intégrant également la diffusion et la conduction, puis par Hill [60] et Coelho [25][38].

### Modèle de Coelho du plan de charge unique

Coelho a montré que le modèle ci-dessus d'injection de plans de charges multiples pouvait, tant que les charges n'avaient pas atteint la contre-électrode, être simplifié : la considération d'un plan de charge unique à la coordonnée du centroïde de la charge (son « barycentre », sur le

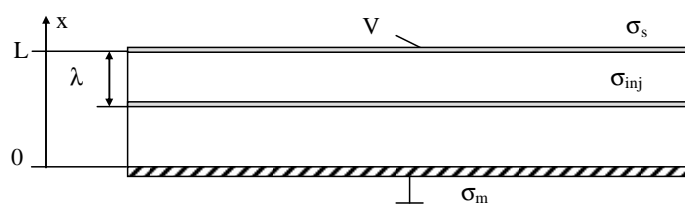


Figure 17 : Modèle du plan de charge unique

plan électrique) donne le même résultat pour le potentiel de surface que le calcul analytique pour la charge distribuée [26].

### **Modélisation du retour de potentiel**

A notre connaissance, le premier à avoir développé une modélisation du retour de potentiel par retour de la charge injectée vers les électrodes est également Coelho. Son modèle très simple du plan de charge s'injectant dans le matériau permet de modéliser élégamment le retour de potentiel [26]. Un plan de charge unique qui s'est injecté à une profondeur  $\lambda_0$  lors de l'application de la tension aura tendance, après la neutralisation, à retourner sous l'influence de son propre champ, vers l'électrode injectrice, à condition qu'il n'ait pas dépassé le milieu de l'isolant. Le retour de potentiel sera à tout moment proportionnel à la distance parcourue par le

plan de charge, lors de son retour vers la surface, selon la formule  $V = -\frac{\sigma_{inj}}{\epsilon}(\lambda_o - \lambda)$ . Le retour de potentiel après un temps infini (le plan de charge étant retourné à la surface) est alors proportionnel au produit de la charge injectée par la profondeur d'injection. La dérivée à l'origine du potentiel donne accès à la mobilité.

Lorsque nous avons commencé à utiliser des mesures de retour de potentiel à Supélec, les seules modélisations du retour de potentiel par retour de la charge injecté dont nous disposions initialement étaient celles de Coelho, utilisant un plan de charge unique. Or, ce modèle d'un plan de charge unique, s'il permet de décrire correctement le début du déclin de potentiel en ramenant la distribution de charge à son centroïde, est en réalité dans la plupart des cas inadapté au retour de potentiel, et il faudra considérer la distribution de la charge. Les calculs analytiques utilisant une distribution de charges avaient été faits par Coelho, mais à notre connaissance seulement utilisés pour calculer la dérivée du potentiel à l'origine [26], et les conséquences de l'introduction d'une distribution de charge n'étaient pas pleinement réalisées. En fait, elles sont importantes, car la neutralisation de l'échantillon va induire un plan de champ nul dans le volume du matériau, qui sépare nécessairement la distribution de charges, et cela, quel que soit l'avancement de l'injection. Les charges injectées qui ont franchi ce plan continueront leur injection, les autres reviendront. La répartition de la charge de part et d'autre de ce plan varie avec cet avancement : les charges sont en plus grande quantité du côté le plus proche de la surface de l'isolant. On peut également prouver que, d'après le théorème de Gauss, le retour de potentiel au bout d'un temps infini, lorsque les charges auront rejoint les deux extrémités de l'isolant, est en principe nul. Tout cela ne pouvait être prévu par le modèle initial de Coelho.

La simulation informatique va permettre de retrouver ces résultats. Nous avons utilisé comme situation initiale les distributions de charge représentées Figure 16. Pour simuler le retour de potentiel, une quantité de charge négative est déposée sur la surface, suffisante pour ramener à zéro le potentiel. On calcule alors, avec le même logiciel, l'évolution de la densité de charge, du champ et du potentiel dans le matériau. La Figure 18 présente les résultats concernant la charge et le champ pour le retour de potentiel après 80 secondes de déclin. On voit que le plan à champ nul reste fixe dans le matériau, comme on l'avait prévu sur le plan théorique : les charges situées à gauche de ce plan se déplacent vers la gauche, les charges situées à droite se déplacent vers la droite, aucun facteur extérieur n'intervenant si le champ reste nul à l'extérieur de l'échantillon.

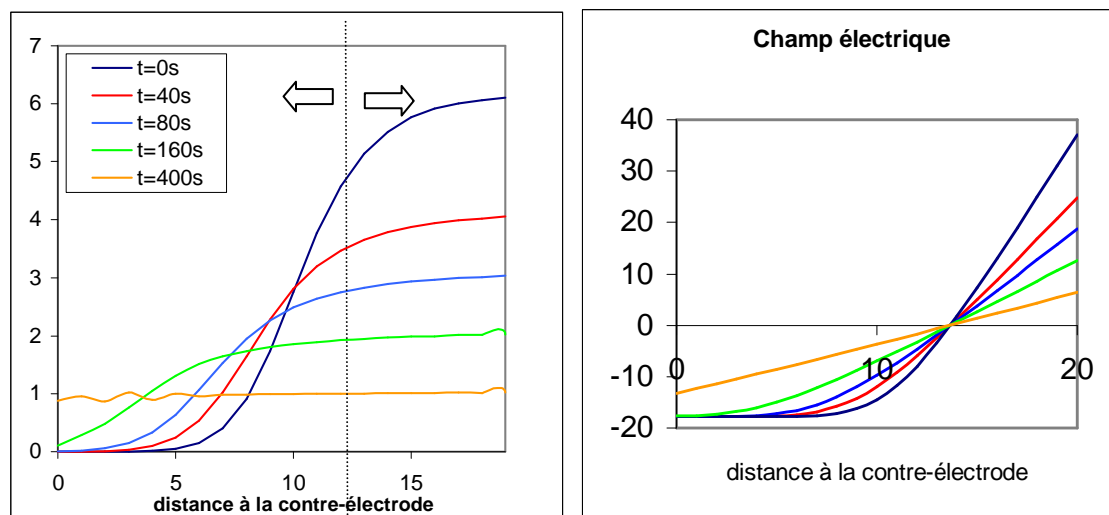


Figure 18 : Charge et champ électrique lors de la simulation du retour de potentiel après un déclin de 80s

(NB : la valeur de la charge de surface pour l'abscisse  $x = 20$  n'a pas été représentée, elle est négative et décroît progressivement en valeur absolue, au fur et à mesure que la charge interne positive qui s'évacue vers la droite vient la neutraliser)

Il est alors possible de reconstituer la courbe du retour de potentiel en fonction du temps, comme le montre la Figure 19, pour diverses valeurs du temps de déclin avant neutralisation. On constate que le début du retour de potentiel est dominé par le retour rapide de la charge proche de la surface injectrice (qui se retrouve dans la zone de champ le plus élevé), la suite faisant apparaître par une baisse de potentiel, le déplacement de la charge située après le plan de champ nul. Ce « retour du retour de potentiel » vers zéro est

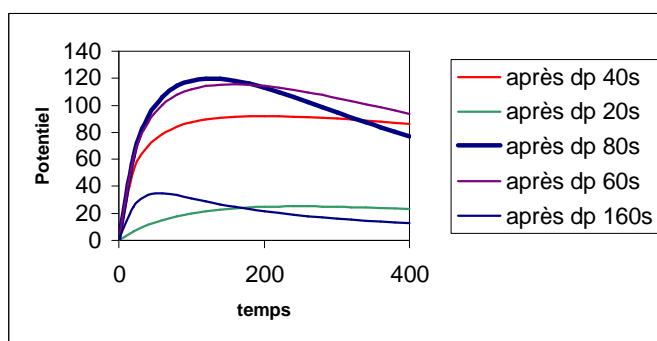


Figure 19 : Simulation du retour de potentiel après divers temps de déclin

(la courbe correspondant à la Figure 16 est en gras)

d'autant plus rapide que l'injection a progressé dans le matériau. Ce résultat ne peut être expliqué par un modèle de plan de charge unique, mais comme on l'a vu, il peut l'être en considérant de multiples plans de charge s'injectant successivement. Le seul cas où le modèle de plan de charge unique retournant vers l'électrode injectrice peut être appliqué est le cas du début de l'injection, où la différence entre les champs de part et d'autre du plan de champ nul est telle qu'on pourra considérer que le déplacement de la fraction de charge continuant à s'injecter vers la contre électrode est infiniment lent, et donc négligeable.

### Limite de ces modèles

En dépit de leur intérêt pour les semiconducteurs, ces modèles ne semblent pas être bien adaptés aux matériaux isolants : nous n'avons pas pu identifier une seule publication montrant des résultats expérimentaux décrivant le comportement que ces modèles prévoient, qui est la présence d'une phase initiale à vitesse de déclin de potentiel constante. Remarquons que l'introduction d'une mobilité dépendant du champ [14][38] ne change pas ce problème, ni celle d'une mobilité effective (voir paragraphe suivant).

### B.3.7.2 Modèles combinant électrostatique et thermodynamique. Influence du piégeage et transport dispersif

Un traitement correct du transport de la charge dans un matériau désordonné nécessite la prise en compte du piégeage, qui est une conséquence du désordre du matériau. Or ce désordre comporte différents aspects, entraînant des énergies de pièges très variées. Les niveaux peu profonds en énergie sont des conséquences d'un léger désordre, souvent lui-même plus ou moins périodique, d'un matériau : la profondeur de ce type de pièges est typiquement inférieure à 0,1 eV. En revanche, les pièges liés à des défauts chimiques, comme des lacunes d'oxygène dans les oxydes, donnent généralement des niveaux d'énergie bien plus bas, de l'ordre de 3eV sous la bande de conduction. On parle alors de piégeage profond. La densité de ces niveaux est particulièrement grande dans les polymères.

La modélisation peut introduire les pièges peu profonds sous la forme d'une *mobilité effective* des porteurs, modélisant la conduction par sauts entre ces pièges [61]. En circuit fermé (mesures de courant), les porteurs étant renouvelés par une interface et absorbés par l'autre, un équilibre peut en effet être rapidement atteint, dans lequel le taux de remplissage de ces pièges en chaque point atteint une valeur d'équilibre. Ce modèle sera en fait exactement identique au modèle électrostatique, pour peu que la mobilité prise en compte soit la mobilité effective  $\mu_{eff} = \mu \tau_0 / (\tau_i + \tau_0)$ , qui prend en compte le temps moyen passé par la charge dans des niveaux pièges ( $\tau_i$ ) en comparaison à celui de son séjour dans des états de transport ( $\tau_0$ ).

Le cas des mesures de déclin de potentiel, en circuit ouvert, est plus complexe car le régime étudié est par définition transitoire, et il faut prendre en compte le caractère *dispersif* du transport de charge, qui ne s'effectue plus par plans successifs.

Un premier type de modèle, développé par Wintle [33], et repris par la suite [20] restreint la notion de la mobilité effective au transport par sauts entre pièges peu profonds via les états de transport. Le piégeage dans les niveaux profonds lui est superposé, et supposé irréversible. Ces modélisations prévoient donc un potentiel tendant vers une constante, ce qui est plus proche de la réalité expérimentale que les modèles précédents. Des modélisations plus complètes ont ensuite introduit un dépiégeage, assisté par le champ et la température, de cette charge piégée [37], ce qui a permis de faire apparaître un concept de *mobilité effective dépendant du temps*. Ce type de modélisation a été repris plus récemment avec des outils de simulation informatique pour rendre compte de mesures effectuées sur du polypropylène [62].

Cependant, on ne peut traiter aujourd'hui la question du transport de charges dans un milieu désordonné sans mentionner le cadre plus général du transport dispersif, qui traite la question comme un ensemble, en supposant une distribution continue des niveaux de pièges. Depuis les travaux initiateurs de Scher et Montroll [63], de nombreux modèles de transport dans des systèmes désordonnés ont été proposés. L'apport de la simulation numérique à cette question est important [12].

Le temps va jouer un rôle clé dans l'évolution de la distribution de la charge. Pour les temps courts, la charge se répartit entre les niveaux de pièges profonds et superficiels, proportionnellement aux probabilités de capture de ces différents niveaux : les pièges superficiels étant les plus nombreux, la charge sera donc encore assez mobile. Puis, la charge va être progressivement piégée dans des niveaux plus profonds où elle sera plus stable. Sa mobilité moyenne va donc diminuer avec le temps. Une approche simplifiée introduit le concept d'*énergie de démarcation*, par :

$$E_d(t) = -kT \ln[(N_c / N_i)(t / \tau_0)] \quad [\text{Eq 21}]$$

$N_c$  étant la densité d'états de conduction,  $N_i$  la densité de pièges, et  $\tau_0$  la durée de vie des porteurs dans les états de conduction.

Cette énergie de démarcation à l'instant  $t$  peut être considérée comme l'énergie en dessous de laquelle à cet instant l'émission des pièges peut être négligée, et au-dessus de laquelle on peut considérer les niveaux pièges comme en équilibre avec les états de transport.

Un calcul analytique du déclin de potentiel utilisant cette notion a été publié par Arkhipov ([65] , voir aussi [66]). En supposant une forme exponentielle de la distribution de pièges, il a montré que le déclin de potentiel en représentation  $\log(dV/dt)=f(\log t)$  présentait deux asymptotes de pentes différentes, qui se croisaient à une valeur représentant le temps de transit moyen.

On peut citer un article très récent tentant de corréler ce type de modèles avec des expériences sur du polyimide [64].

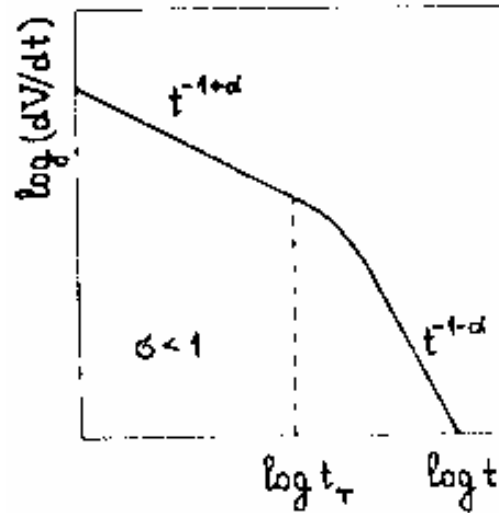


Figure 20 : Déclin de potentiel calculé par un modèle de transport dispersif [65]

### B.3.7.3 Modèles purement thermodynamiques : courant contrôlé par le dépiégeage

Pour les temps « longs », ou pour des isolants de faible épaisseur, lorsque le temps de transit des porteurs de charge est faible comparé à leur temps caractéristique de dépiégeage, on peut éliminer complètement le facteur géométrique des modèles, la cinétique de dépiégeage étant le facteur déterminant le déclin de potentiel, et non le rapprochement de la charge à la masse.

La stabilité de la charge est proportionnelle à l'exponentielle de la profondeur énergétique des pièges, et donc le ralentissement observé du déclin de potentiel est essentiellement ici attribué à l'augmentation progressive de la profondeur énergétique de piégeage des porteurs. On peut considérer dans ce cas que l'énergie de démarcation considérée précédemment est, à un instant donné, la limite entre niveaux de pièges profonds remplis, et pièges superficiels dépeuplés depuis le début du déclin. En utilisant cette approximation, formulée par Simmons et Tam [67], et appliquée par Watson à la modélisation du déclin de potentiel [12], le courant d'émission des pièges est lié à la densité énergétique des pièges au niveau  $E_d(t)$  de la manière suivante :

$$I(t) \propto N(E_d(t)) \frac{dE_d(t)}{dt} = N(E_d(t)) \frac{kT}{t} (N_t / N_c) \tau_0 \quad [\text{Eq 22}]$$

On peut déduire de cette équation que la représentation  $tI(t)=f(\log t)$  donnera une image de  $N(E)$ , la densité énergétique des pièges en fonction de l'énergie. Si on considère maintenant l'expérience de déclin de potentiel, la vitesse de déclin  $dV/dt$  sera proportionnelle à la partie droite de l'équation [Eq22], et donc, multipliée par le temps, elle donnera la même image de  $N(E)$ . Watson a montré que cette simple représentation  $tdV/dt=f(\log t)$ , comparée à une simulation numérique détaillée, sous-estimait la densité de pièges peu profonds par rapport aux pièges profonds, puisqu'elle ne prenait pas en compte l'influence du repiégeage durant la dérive de la charge. Cependant, elle donne d'intéressants résultats, qu'il a présenté sur du polystyrène monodisperse. Sur la Figure 21, nous avons reproduit ses mesures de potentiel ainsi que les données en représentation  $tdV/dt=f(\log t)$ , dont il a converti l'abscisse en énergie par l'application de [Eq21] pour différentes températures (cette opération permet également de calculer  $\tau_0$ ).

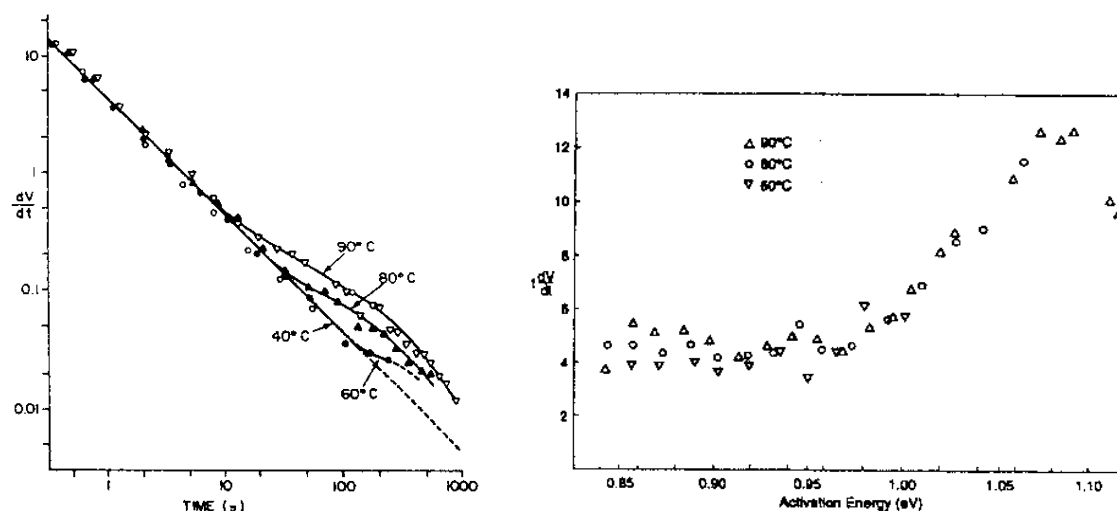


Figure 21 : DP sur polystyrène et traitement des données selon le modèle de l'énergie de démarcation [12]

#### B.3.7.4 Injection limitée par les interfaces

Les phénomènes volumiques évoqués dans les paragraphes précédents ne détermineront le signal mesuré que si ce sont eux qui représentent l'obstacle principal au déplacement de la charge. Dans de nombreux cas cependant, ce seront les phénomènes d'interfaces qui détermineront le signal mesuré.

Après quelques incertitudes et controverses, il a été notamment démontré que le phénomène du *cross-over* ne pouvait être expliqué dans le cadre de modèles purement électrostatiques, et que la seule explication cohérente, donnée par Sonnonstine et Perlman [34] était la rétention partielle de charge en surface, l'émission dans la masse de l'isolant étant déterminée par une loi d'injection dépendant du champ (la rétention est d'autant plus forte que le champ est faible). En suivant les calculs de ces auteurs, deux régimes se succèdent dans le temps : un régime à champ élevé, limité par la dérive de la charge d'espace interne (régime SCLC), suivi par un régime à champ faible, limité par la rétention de charge en surface.

Ce type de modélisation est en bon agrément avec des mesures de courants thermostimulés, qui permettent en principe, comme l'avait montré Von Seggern [68], de séparer les pièges de surface de ceux du volume, et montrent pour la plupart des isolants, que les premiers sont plus profonds en énergie que les seconds. Il existe donc une barrière énergétique, que ce soit au contact métal-isolant, ou lorsqu'on dépose des ions sur une surface par décharge corona (voir Figure 22). Nous avons déjà évoqué ce problème §B.3.3. Dans le premier cas, les paramètres de la barrière à franchir dépendent essentiellement du champ appliqué. Pour les champs modérés et des températures au dessus de l'ambiante, la barrière sera franchie par émission thermoélectronique assistée par le champ, et la loi de courant à travers cette barrière sera du type Schottky. Pour les champs très forts, la barrière pourra être franchie sans assistance thermique par émission de champ.

Dans le deuxième cas (surface non métallisée), la situation est plus complexe, car les énergies des charges déposées peuvent être variées et elles évolueront dans le temps. On peut en déduire cependant que les cas où la cinétique de dépiégeage de la charge de surface détermine celle du déclin de potentiel dans son ensemble (deuxième phase du modèle de Sonnonstine) doivent être fréquents. Ce type de modélisation n'est cependant quasiment jamais suggéré dans la littérature. Nous sommes les seuls à notre connaissance à avoir proposé un modèle de dépiégeage progressif de la charge de surface, analogue à celui de Watson, et montré qu'il était indispensable pour expliquer des mesures que Pedro Llovera avait réalisées sur des films minces de polypropylène, à champ élevé et température ambiante (voir [31] et ci-dessous § D.2.3), avec les caractéristiques suivantes :

- un des phénomènes observés (« pic A », voir §D.2.3) apparaît avec la décharge couronne négative seulement, et est activé par l'intensité de cette décharge
- l'exposition d'un échantillon chargé négativement par décharge couronne aux neutres de la décharge couronne négative conduit à un effondrement rapide de la tension
- d'autres mesures, confirmant ce résultat, montrent que le temps de transit de la majorité de porteurs de charge est négligeable dans le volume comparé au temps caractéristique du « pic A »

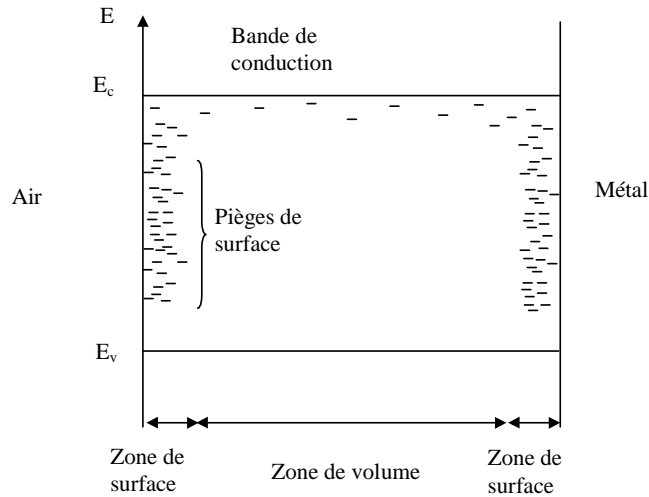


Figure 22 : Modèle de répartition des niveaux pièges du matériau

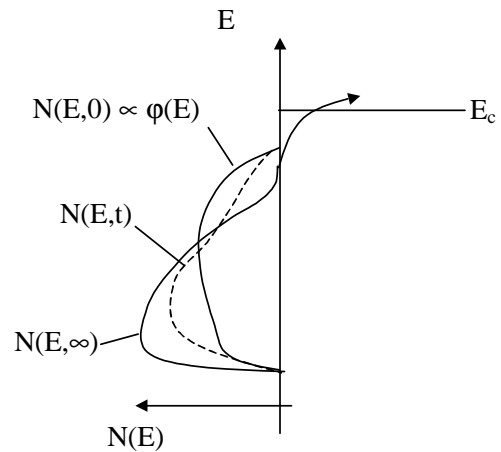


Figure 23 : Evolution du peuplement des pièges de surface avec le temps

Pour rendre compte de ces phénomènes, un modèle original dérivé de celui de « l'énergie de démarcation » a été élaboré. Il suppose que la répartition en énergie des niveaux de pièges du film est celui de la Figure 22, c'est-à-dire que l'essentiel des charges est piégé dans des niveaux de surface relativement profonds par rapport au volume.

La décharge corona peuple cependant initialement les niveaux avec une certaine distribution énergétique (Figure 23), y compris des niveaux relativement hauts en énergie. Pendant la charge, ce sont surtout ces niveaux qui se dépeuplent, pendant que les niveaux d'énergie plus basse se remplissent. Cette modélisation permet d'expliquer la baisse progressive mesurée du courant pendant la charge, et les caractéristiques du « pic A » (voir §D.2.3).



## B.4 Analyse critique de la bibliographie, et proposition d'une méthodologie

### B.4.1 Position du problème : Quel modèle choisir ?

Nous avons résumé les mécanismes possibles sur la Figure 24.

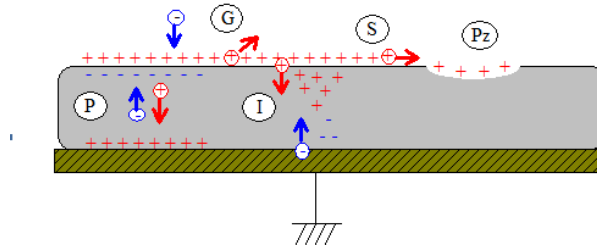


Figure 24 : Différents mécanismes possibles pour expliquer le déclin de potentiel

- P : polarisation interne (incluant la conductivité intrinsèque)
- I : injection de charge
- G : neutralisation par le gaz
- S : conduction de surface
- Pz : phénomènes piézoélectriques

La difficulté essentielle dans l'exploitation du foisonnement de modèles présentés ici, est leur adéquation à un matériau et à des conditions expérimentales données. La littérature fournit une grande abondance d'articles présentant des résultats expérimentaux, par exemple des mesures de courants d'absorption ou de déclin de potentiel, une partie théorique développant un modèle, et une discussion montrant un bon accord des courbes qu'il produit et de celles produites par la théorie. Parmi les bons articles récents de ce type, voir par exemple [62] ou [64]. Mais bien souvent cette discussion est insuffisante, car des modèles fondés sur des hypothèses physiques différentes, comme la polarisation d'un matériau désordonné (Figure 14), le transport dispersif d'une charge injectée (Figure 20), ou le dépiégeage progressif d'une charge (Figure 21), peuvent donner exactement le même type de courbes, composées de deux lois de puissance. Or la signification physique du coude de la courbe pour les trois types de modèles est différente : dans le premier cas, il s'agit d'un *temps de relaxation* caractéristique, dans le deuxième cas, d'un *temps de transit*, et dans le troisième, d'une *énergie caractéristique* de pièges. Il importe d'être conscient de cette difficulté et de réaliser différents types d'essais pour discriminer autant que possible les phénomènes. Le recours aux techniques de mesure de charge d'espace résolues en profondeur peut parfois permettre d'apporter un diagnostic, même s'il ne résout pas toujours la question de la discrimination entre charges injectées et hétérogénéités de polarisation.

Par ailleurs, les mécanismes prédominants seront dépendants du niveau de contrainte appliqué à l'isolant. Ainsi, le courant mesuré sur un isolant sera généralement, pour les champs faibles, d'apparence ohmique et d'origine dipolaire. Avec l'augmentation du champ, le scénario suivant se rencontre fréquemment : un mécanisme d'injection de charge va d'abord, pour les champs moyens, conduire à une forte dépendance des électrodes, et du niveau de champ selon une loi de type Schottky, puis, pour les champs élevés, on aura une limitation du courant par le volume, impliquant une loi de type SCLC ou de conduction par sauts. Aux champs très élevés, des avalanches électroniques ou des phénomènes « d'électrons chauds » interviendront et pourront conduire à des phénomènes impulsifs pré-disruptifs.

Enfin, la nature des porteurs et des mécanismes microscopiques de conduction est une question importante et difficile, qui n'a pas été examinée ici, où l'on a privilégié une approche plus macroscopique. Les différents mécanismes évoqués ici ne reposent pas sur une hypothèse particulière sur la nature des porteurs de charge : électrons, trous, ions, etc.

On le voit, la modélisation du comportement d'un isolant ne saurait se résumer à considérer un nombre ou deux (permittivité, conductivité), mais fait intervenir une grande diversité de phénomènes. Elle ne peut se passer de la confrontation à des mesures variées, qui seules, peuvent permettre de trancher.

## B.4.2 Analyse critique de la bibliographie

Concernant la littérature existante, il est frappant de remarquer que la grande majorité des modélisations du déclin de potentiel sont des modèles de transport de la charge injectée, avec parfois une composante surfacique (écoulement de la charge par contournement). Nous avons cité dans la section B.3 que des travaux majoritairement un peu anciens, mais il se publie aussi chaque année un certain nombre de contributions nouvelles sur le sujet, qui confirment cela.

Notre expérience à Supélec concerne des dizaines de matériaux différents, et dans la grande majorité de ces cas, nous avons pu au contraire estimer que les phénomènes de polarisation de l'échantillon dominaient, pour une très large gamme de valeurs de champ, et étaient très rarement négligeables. Sans pouvoir en apporter de preuve rigoureuse car il faudrait se procurer les matériaux, nous avons acquis la conviction qu'une partie importante des articles de notre base de données présentant des modélisations couplées à des résultats expérimentaux passaient à côté de phénomènes importants pour l'explication du déclin.

## B.4.3 Développement d'une méthodologie

Nous nous sommes appuyés sur notre expérience pour proposer, au début des années 2000, un mode opératoire pour ces mesures de potentiel [69]. Cette démarche, sans faire véritablement école, a cependant été reprise, en partie ou totalement, par d'autres équipes (voir par exemple l'utilisation de la transformée  $tdV/dt=f(\log t)$  dans [70]).

### B.4.3.1 Développement d'un mode opératoire.

Nous suggérons les étapes suivantes :

#### *Vérifier le caractère négligeable de la neutralisation atmosphérique*

Cela peut être réalisé en plaçant un échantillon d'un matériau dont la charge est connue pour être extrêmement stable (par exemple du PTFE chargé par corona pendant une longue durée à chaud), et en mesurant l'évolution de son potentiel sur une longue période. On peut aussi vérifier l'influence d'un flux gazeux sur la surface.

#### *Distinguer les phénomènes transversaux des phénomènes latéraux<sup>5</sup>*

Pour cela, on peut vérifier l'influence d'une modification du champ latéral, en vérifiant l'influence sur  $V(t)$  du profil du dépôt de charge initial. On peut également réaliser des cartographies du potentiel de surface par balayage 2D, ce qui permet de détecter un étalement de la charge déposée.

#### *Tenter d'identifier une "réponse de base" linéaire correspondant à une polarisation*

Il est souvent possible de trouver, pour des valeurs faibles des paramètres d'activation (champ électrique, température, électrodes), un régime linéaire en fonction du champ pour lequel les courbes normalisées  $V(t)/V_0$  se superposent pour différentes valeurs du potentiel initial  $V_0$ , et notamment lors d'un changement de polarité.

---

<sup>5</sup> Cette distinction n'est pas identique à celle entre conduction de volume et de surface, même si cela peut souvent s'y ramener

On peut dans certains cas (échantillons épais) corrélérer cette réponse « de base » à la polarisation qui apparaît lorsqu'on applique un champ sans déposer de charge (en approchant une électrode polarisée, voir §D.1.2)

Les interprétations physiques possibles de ce type de réponse sont de deux types :

- polarisation dipolaire
- conduction intrinsèque

Il est généralement possible d'évaluer la prédominance de l'une ou de l'autre, en utilisant des mesures après des dépôts de charge successifs, comme le retour de potentiel

### ***Interpréter cette réponse de base : séparer l'influence de la conduction intrinsèque de celle de la polarisation dipolaire***

Si la polarisation dipolaire prédomine, le comportement de l'isolant peut être décrit par une fonction d'absorption, c'est-à-dire que la réponse de l'isolant est dominée par le créneau de champ qui lui a été appliqué et par le temps écoulé depuis cette application, plus que par la valeur à l'instant  $t$  du champ interne. La conduction intrinsèque présente en principe la propriété opposée.

En effectuant des dépôts de charges successifs, il est donc en principe possible d'analyser la réponse en termes de l'un ou de l'autre. Par exemple, la valeur et le maximum du retour de potentiel sont déductibles du déclin dans le modèle de la polarisation dipolaire, comme nous l'avons montré ci-dessus. Il est relativement facile de vérifier si l'expérience donne le résultat prévu. Si le retour de potentiel est nettement plus faible, c'est que la conduction domine dans la réponse (voir exemple du polypropylène §D.2.4)

### ***Déterminer le domaine de prédominance de l'injection de charge***

L'injection de charge, que ce soit celle de la charge déposée, ou l'injection de charge à la contre-électrode, est nécessairement dépendante de la physique des interfaces. Lorsqu'elle apparaît, et commence à jouer un rôle important sur la dynamique du potentiel de surface, il doit être possible de réaliser un changement des interfaces (altération, métallisation, application de diverses activations), qui perturbe le signal de potentiel observé. Si dans tous les cas il reste identique, c'est très probablement que le déclin de potentiel est avant tout dû à un phénomène de polarisation interne, soit dipolaire, soit conductif, et non à l'injection.

Dans le cas le plus fréquent ici d'un échantillon dissymétrique, les signes les plus clairs de cette injection de charge sont la dissymétrie du déclin de potentiel lorsqu'on inverse la polarité de charge, et l'apparition du *cross-over*.

Il faut cependant être prudent dans l'interprétation, car, lorsque le transit dans le volume de l'échantillon est l'étape qui limite la cinétique du déclin de potentiel, il est possible qu'aucun de ces deux phénomènes ne soit observé. Dans ce cas cependant, d'autres effets, de dépendance en fonction du champ, ou de comportement lors du retour de potentiel, ou de dépôts de charge successifs, ne correspondront pas à ce qu'on peut calculer avec une fonction d'absorption.

A partir de ces multiples essais, le domaine de conditions expérimentales (tension, température, matériau d'électrode, type de charge...) dans lequel l'injection de la charge domine la réponse peut être déterminé. La question se pose ensuite, à l'intérieur de ce domaine, de déduire des courbes  $V(t)$  l'influence de la polarisation, pour évaluer la fonction qui pourrait ensuite être corrélée à des modèles d'injection.

## ***B.4.3.2 Avant toute interprétation, représenter convenablement les données***

### ***Importance du sujet***

L'expérience acquise à travers la bibliographie et le contact avec différentes équipes, en France ou à l'étranger, utilisant des techniques de déclin de potentiel, nous permet d'affirmer que les

modes de représentation adoptés pour les données de potentiel de surface sont souvent inadaptés car ils masquent certaines informations importantes et peuvent par ailleurs induire de fausses conceptions sur la physique en œuvre dans l'expérience. Nous allons présenter ici différents types de représentations, leurs avantages et leurs inconvénients.

### **Représentation $V=f(t)$**

C'est la représentation la plus simple, qui ne préjuge pas de la physique qui intervient dans le problème, mais elle a deux inconvénients :

- elle est systématiquement décroissante, avec une décroissance ralentie dans le temps. Du coup, les points caractéristiques, c'est-à-dire les déviations à la forme « usuelle » ne sont pas aisément identifiables.
- Elle est peu adaptée à la représentation de phénomènes ayant une dynamique très large, présentant à la fois des caractéristiques sur les temps très courts et les temps très longs

On trouvera ici quelques exemples de courbes « brutes » de ce type (Figure 6, Figure 26 et Figure 27 à gauche, Figure 44).

### **Représentation $V=f(\log t)$**

Elle a l'avantage par rapport à la précédente de supprimer le 2<sup>ème</sup> inconvénient (mais pas le premier).

### **Représentation $\log(dV/dt)=f(\log t)$**

Cette représentation s'inspire d'une constatation au départ empirique : pour beaucoup de matériaux, les vitesses de déclin de potentiel (comme les courants mesurés si on applique un créneau de potentiel à l'isolant) décroissent en fonction du temps suivant une loi de puissance

$$\frac{(dV/dt)_t}{(dV/dt)_{t_0}} = \left( \frac{t}{t_0} \right)^{-n}$$

On en trouvera quelques exemples dans ce document (Figure 21 (partie gauche) et Figure 43). L'avantage de cette représentation est qu'elle met mieux en lumière que les précédentes les variations de la dynamique du déclin. L'inconvénient en est la perte de la valeur absolue du potentiel.

### **Représentation $\log(dV/Vdt)=f(\log t)$**

Si on désire introduire une conductivité équivalente  $\sigma$ , cette représentation peut aussi s'écrire :

$$\log \left( \frac{\sigma}{\epsilon_0 \epsilon_r} \right) = f(\log t)$$

C'est-à-dire qu'à une constante près elle donne l'évolution de cette conductivité équivalente en fonction du temps. L'avantage qu'a cette représentation est de réintroduire par ce biais le paramètre du champ (ce sont les variations relatives du potentiel qu'on regarde).

### **Représentation $tdV/dt=f(\log t)$ ou $tdV/V0dt=f(\log t)$**

Depuis la thèse de Llovera, nous avons souvent utilisé cette représentation pour nos mesures. Nous avons vu §B.3.7.3 son introduction dans le cadre du modèle de l'énergie de démarcation (Figure 21). Indépendamment de cette hypothèse physique, ce mode de représentation est intéressant, car la dérivée du potentiel étant souvent en loi de puissance décroissante, avec un coefficient moyen proche de -1,  $tdV/dt$  est en moyenne « horizontal », et donc les déviations à cette moyenne sont clairement mises en évidence, quelle que soit leur cause. Par ailleurs, elle a une interprétation physique simple : l'aire sous la courbe comprise entre deux instants  $t_1$  et  $t_2$  est proportionnelle à la variation de potentiel entre les deux instants  $\Delta V = V(t_2) - V(t_1)$ .

$$\int_{\log t_1}^{\log t_2} t \frac{dV}{dt} d \log t = \int_{\log t_1}^{\log t_2} \frac{1}{\ln 10} \frac{dV}{d \log t} d \log t = \frac{\Delta V}{\ln 10} \quad [\text{Eq 23}]$$

On voit par exemple sur la figure ci-contre comment une fonction exponentielle  $V(t)=V_0 e^{-t/\tau}$  apparaît avec cette représentation. Il est à noter que l'abscisse du maximum est le temps caractéristique  $\tau$  et son ordonnée est le potentiel  $V_0 e^{-1}$ . Du point de vue des résultats expérimentaux, on peut isoler avec cette représentation des phénomènes de nature différente dans le matériau qui conduisent à des réponses avec des caractéristiques propres sous forme de pics.

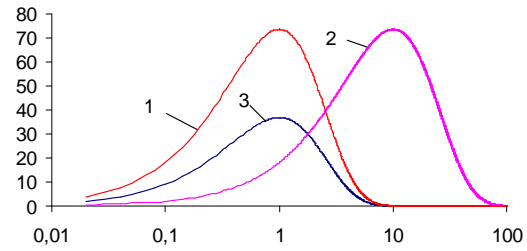


Figure 25 : Représentation d'exponentielles  $V_0 e^{-t/\tau}$  sous la forme  $t dV/dt = f(\log t)$

1:  $V_0=200, \tau=1$ , 2:  $V_0=200, \tau=10$ , 3:  $V_0=100, \tau=1$

On peut donc leur attribuer un temps caractéristique, une amplitude et une aire sous la courbe. La Figure 26 montre la clarté qu'apporte cette représentation indépendamment de toute interprétation physique des courbes. On voit bien la différence de dynamique lors de l'augmentation de température (pic autour de 1000 secondes) et dans une situation où l'injection corona est activée (pic autour de 10 secondes). Ces pics seront étudiés en détail §D.2, on les montre ici uniquement pour mettre en évidence les propriétés de la représentation.

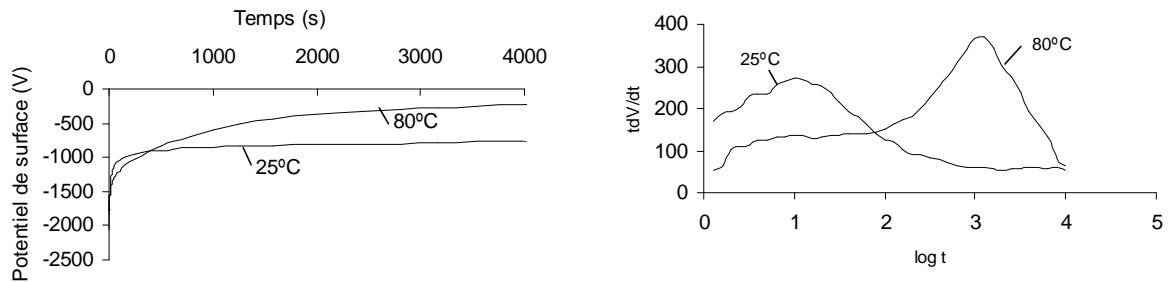


Figure 26 : Représentation  $V(t)$  et  $t dV/dt = f(\log t)$   
(2 films différents de polypropylène chargés par corona  $V_0 = -2000V$ )

Un autre exemple, pour lequel les différences entre courbes sont moins évidentes que dans le cas précédent, est donné Figure 27. L'intérêt de la représentation de droite est évident.

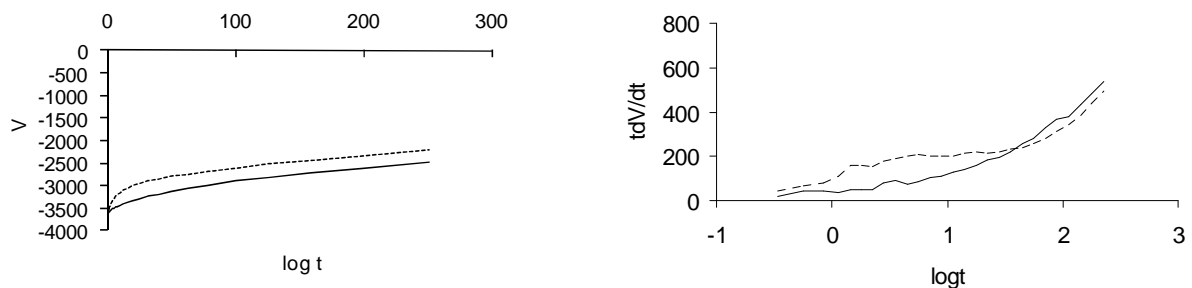


Figure 27 : Représentation  $V(t)$  et  $t dV/dt = f(\log t)$

Film de polypropylène métallisés - même échantillon soumis à un nombre croissant de polarisations AC.

L'unité utilisée pour les courbes  $t dV/dt = f(\log t)$  que nous présentons ici est le volt (V). Pour comparer des choses comparables, il est intéressant de normaliser cette courbe par la tension  $V_0$

de départ (l'aire des pics est alors proportionnelle à la perte *relative* de potentiel par rapport au potentiel initial).

## **B.5 Conclusions - Perspectives**

L'originalité de notre approche depuis une dizaine d'années résulte du choix de privilégier la physique sur la mathématisation. Le travail consistant à « remettre à plat » pour des matériaux assez variés les hypothèses faites, généralement implicitement, sur les phénomènes physiques considérés, et la synthèse de l'expérience acquise, a été en lui-même suffisamment important pour que le développement de modélisations sophistiquées soit repoussé au second plan.

D'autres équipes ont cependant été dans la direction du développement de codes numériques pour simuler le déclin de potentiel dans certains cas particuliers, généralement l'injection de la charge avec certaines hypothèses sur le piégeage [61], ou la conduction de surface [57].

Un besoin de mettre en commun ces expériences qui partent d'approches différentes autour des techniques de mesures de potentiel de surface est apparu depuis longtemps déjà, mais il a manqué un cadre qui permette de formaliser les collaborations. C'est la raison pour laquelle nous avons récemment rédigé un projet interne sur cette thématique dans le cadre du groupe Matériaux du GDR SEEDS. Ce projet a été sélectionné en mai 2009, et il est doté d'un petit budget visant à permettre entre 2009 et 2011 plusieurs actions :

- à partir de l'expertise existant à Supélec, une mise à disposition du groupe de la bibliographie existant sur la question et d'un mode opératoire de traitement des données issues des mesures de potentiel de surface.
- Une analyse des travaux en cours utilisant cette technique, des échanges de données et des propositions d'essais. Deux séjours d'un étudiant en thèse au LAPLACE, Michaël Decup, sont prévus à Supélec. L'un d'eux a eu lieu en novembre 2009.
- Le lancement d'un programme de simulation informatique du déclin et du retour de potentiel. Un stage de master est proposé sur ce thème, coencadré avec Séverine Le Roy et Fulbert Baudoin. Ces collègues ont développé depuis plusieurs années au LAPLACE une compétence dans le domaine [71].
- Des publications communes, et des propositions de développements expérimentaux.
- Deux réunions de travail internes seront organisées (l'une d'entre elles a eu lieu en novembre 2009).

Par ailleurs, nous sommes partenaires d'un projet ANR « blanc » déposé par le LAPLACE en février 2010 intitulé « Modélisation du transport de charges dans les matériaux isolants à haute performance du Génie Electrique », en partenariat avec l'Institut de Mathématiques de Toulouse (IMT). Il a pour but la compréhension des phénomènes de génération et de transport de charges dans les matériaux isolants désordonnés sous contraintes électriques, ainsi que le développement d'un modèle de transport de charges unidimensionnel capable de prédire la dynamique de la charge dans ces matériaux, quelle que soit la contrainte électrique.



## C. Développement de techniques électrostatiques

*Il suffit de se référer au problème de l'électrification que Lénine rattachait, soit dit en passant, à la révolution socialiste internationale.*

Trotsky, Critique du programme de l'Internationale Communiste, 1928

*Actuellement, un tiers de l'humanité est toujours sans accès à l'électricité.*

Commission des Nations Unies pour le développement durable, 2007

### C.1 L'avenir des techniques de potentiel de surface

Avant tout, abordons de front une question importante : les mesures de potentiel de surface sont-elles dépassées, par rapport à d'autres techniques plus sophistiquées ?

Premier élément de réponse, fondé sur l'observation du présent et du passé proche. Comme nous l'avons dit, les techniques de mesure de la charge d'espace, thermiques ou acoustiques, résolues en profondeur, ont produit depuis 25 ans une importante quantité de données concernant la distribution de la charge et le transport dans les isolants, et ont relégué un peu au second plan des techniques plus simples comme les mesures de courants transitoires et de potentiel de surface. Ces techniques sont cependant souvent complexes à mettre en œuvre, elles nécessitent un traitement mathématique parfois lourd et un étalonnage délicat, et elles ont un domaine d'application dont il faut connaître les limites, en termes notamment d'épaisseur de matériau, de surface d'électrode minimum, ou de stabilité de la charge étudiée. L'interprétation classique du signal observé en termes d'homocharge (charge au voisinage d'une électrode de même signe que cette électrode) signifiant charge injectée, et hétérocharge (charge au voisinage d'une électrode de signe opposé à cette électrode) signifiant charge de polarisation du matériau, est par ailleurs délicate, car une polarisation hétérogène ne se manifeste pas nécessairement par une hétérocharge (si par exemple la permittivité croît en allant vers l'extérieur de l'échantillon, on aura une homocharge de polarisation). Par ailleurs, une polarisation uniforme du matériau sera plus difficile à visualiser. Il faut donc en permanence croiser les résultats obtenus par différents procédés, et dans les laboratoires qui utilisent ces techniques de mesure de charge d'espace, on continue à effectuer, pour caractériser les isolants, des mesures de courant en fonction du champ (courbes  $j(E)$ ), en continu ou en alternatif, des mesures de courants thermostimulés (courants de court-circuit mesurés à température croissante d'un isolant ayant été polarisé à haute température, puis refroidi), et des mesures de potentiel de surface.

Deuxième élément de réponse, les mesures de potentiel dans leur principe, en tant qu'un des deux grands « cas-types » envisagés §B.2.1, dépassent la simple mesure de déclin de potentiel, de la même façon que les techniques fondées sur des mesures de courant, telles celles mentionnées ci-dessus, dépassent la mesure de courants d'absorption. Il est tout à fait envisageable de développer toute une variété de techniques fondées sur la mesure de potentiel, et pourquoi pas, avec une résolution en profondeur. Elles sont encore peu développées, mais elles pourraient profiter de l'avantage intrinsèque aux mesures de potentiel, que nous avons évoqué : leur grande stabilité, et la sensibilité de la mesure à la distance de la charge à la masse, et non seulement à son mouvement.



## C.2 Banc de mesures développé à Supélec

La version actuelle de ce banc de mesures de potentiel de surface est représentée Figure 28. Il ne présente que peu de caractéristiques exceptionnelles, sinon qu'il a été développé entièrement en interne, ce qui autorise une très grande flexibilité et une grande diversité de possibilités, et quelques caractéristiques particulières.<sup>6</sup>

Le principe de la mesure est le déplacement rapide ( $\sim 0,3s$ ) de l'isolant par un vérin pneumatique entre un poste de charge et un poste de mesure. Le porte échantillon est par ailleurs mobile sur cet axe et la sonde de mesure sur l'axe perpendiculaire, le déplacement sur ces deux axes étant contrôlé par des moteurs pas à pas, ce qui permet la cartographie. La source corona est raccordée à un générateur régulé en courant. La commande du système en mode manuel ou automatique, est réalisée par un logiciel (sous Labview) relié à une carte d'acquisition connectée à un conditionneur de signal analogique, et à une carte électronique permettant le contrôle des moteurs, relais de commandes de la charge, et vérin.

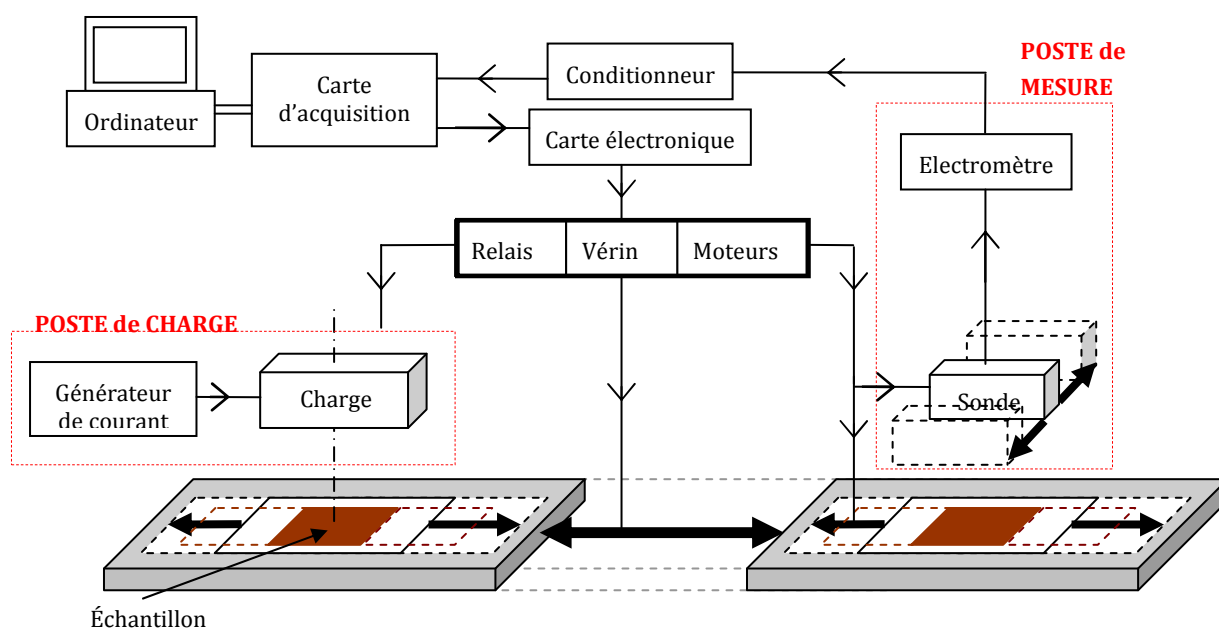


Figure 28 : Banc de mesures de potentiel de surface

Pour la mesure, nous utilisons un classique voltmètre électrostatique Monroe, doté d'une sonde  $\pm 2kV$ , dont l'image est donnée ci-contre. La résolution latérale de la sonde est de l'ordre de 0,5mm lorsque la sonde est très proche de la surface, et décroît lorsqu'on l'éloigne.

La température des échantillons est réglable entre 10°C et 90°C par deux modules à effet Peltier, que l'on peut intercaler dans un porte échantillon spécial. Cela a permis de réaliser des déclin isothermes à différentes températures, ainsi que des mesures de déclin de potentiel thermostimulé.



Figure 29 : Sondes électrostatiques de mesure de potentiel

<sup>6</sup> Il importe d'ailleurs de remercier José de Freitas, technicien au Département Energie, et les étudiants qui ont grandement contribué à ce développement.

### C.3 Maîtrise de la charge

#### C.3.1 La triode corona alimentée en courant

La décharge corona est utilisée depuis longtemps pour charger des isolants, elle permet d'effectuer cette opération dans l'air ambiant, et sans contact avec la surface. La technique de la triode corona, avec l'interposition d'une grille qui permet d'égaler le potentiel de la surface, est à utiliser préférentiellement. Le principe en est donné Figure 30 : le courant principal de décharge a lieu entre pointe et grille, mais une partie de ce courant chargera l'isolant placé sous la grille tant que son potentiel de surface sera inférieur au potentiel de grille.

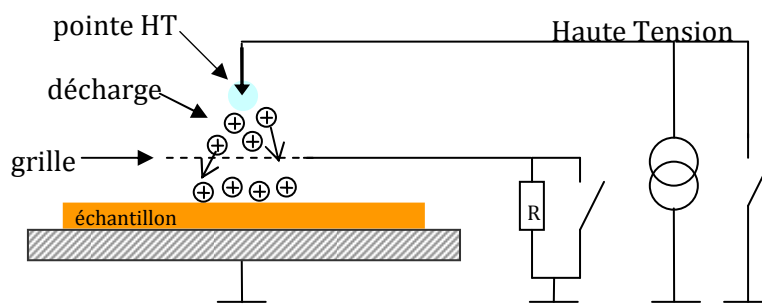


Figure 30 : Poste de charge « pointe-grille »

Le système que nous avons développé est alimenté par une alimentation haute tension régulée en courant, qui présente deux avantages :

- Le régime de la décharge est bien plus stable que lorsque la pointe est alimentée en tension. En effet, les caractéristiques  $i(V)$  des décharges corona sont pratiquement verticales dans le régime d'impulsions Trichel (en négatif)– ou de glow/petits streamers (en positif) qui est utilisé pour ce type d'application.
- Nous pouvons réguler la tension de grille sans faire appel à une deuxième source de tension, en utilisant simplement une résistance en série dans le circuit de grille. La tension de grille est simplement déterminée par le produit du courant de décharge par la valeur de la résistance.

L'expérience montre que ce système est assez fiable, et relativement précis (à 5%, ce qui est suffisant pour nos essais) sur la tension initiale.

Les valeurs numériques utilisées sont typiquement les suivantes :

$$d_{\text{pointe/grille}} = 10\text{-}15 \text{ mm}, d_{\text{grille/isolant}} = 2\text{-}5 \text{ mm}, R = 10 - 200 \text{ M}\Omega, i = 10 - 20 \text{ }\mu\text{A}.$$

#### C.3.2 Durées de charge et modulation de l'action de la décharge

Les temps de charge par décharge corona que l'on retrouve dans la bibliographie sont souvent longs, au minimum 15s, et parfois plusieurs minutes. Il n'y a aucune nécessité à cela, le calcul prouvant que dans la plupart des cas le temps de charge est inférieur à la seconde. Ce temps est le quotient de la charge à déposer par le courant de charge moyen. La charge à déposer dépend de la capacité de la zone à charger de l'échantillon, et donc de son épaisseur, mais même sur les films minces (de l'ordre de  $5\mu\text{m}$ ) elle dépasse rarement les quelques  $\mu\text{C}$ . Un courant de charge de quelques  $\mu\text{A}$  (pour un courant de décharge corona de l'ordre de  $20\mu\text{A}$ ) donne donc une constante de temps de l'ordre de la seconde dans ce cas. Pour un échantillon d'un mm, l'ordre de grandeur est plutôt de quelques ms.

L'explication des temps de charge longs généralement choisis est à mon avis simplement à chercher dans la littérature sur les électrets, qui a influencé de nombreux travaux expérimentaux. Dans ce cas, la recherche d'une charge la plus stable possible conduit effectivement à des temps de charge longs, et souvent à une température ou avec des champs élevés. Mais pour la caractérisation de matériaux, cela a un inconvénient, qui est de perdre la dynamique correspondant aux premiers instants du déclin, et de risquer de provoquer un vieillissement de la surface par l'action de la décharge corona.

Pour le même potentiel de charge, on peut en revanche utiliser des courants de décharge plus ou moins intenses (en changeant la valeur de la résistance pour garder le produit  $RI$  constant), ce qui permet de vérifier si une activation par la décharge corona intervient pour déterminer la cinétique du déclin. Dans les cas où cette activation intervient, elle doit être dépendante du courant (voir §D.2.3).

Enfin, on peut également utiliser la cellule corona pour envoyer des produits neutres de la décharge sur la surface. Cela peut se faire par exemple en gardant la polarité de décharge utilisée pour charger l'isolant, mais en reliant la grille à la masse. Les ions du même signe que la surface seront repoussés et n'atteindront en principe pas la surface, mais les espèces neutres activées de la décharge corona l'atteindront. Nous avons par exemple utilisé ce type d'essais sur des films de polypropylène chargé, ce qui a permis de montrer que le temps de transit des porteurs était faible comparé au temps de rétention de la charge en surface en l'absence de cette exposition (§D.2.3).

### C.3.3 Diverses géométries de postes de charge

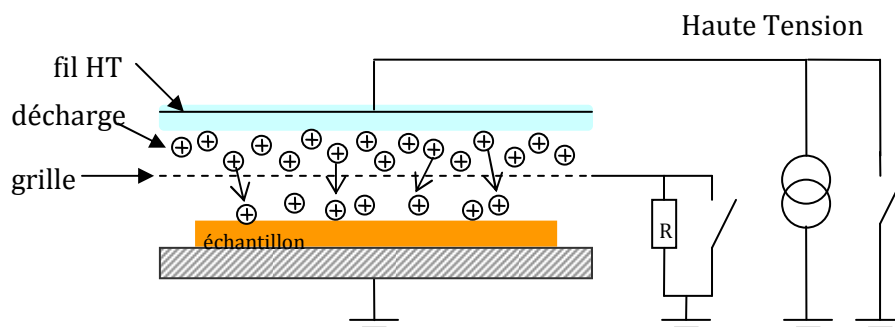


Figure 31 : Poste de charge « fil-grille »

Plusieurs géométries de charge peuvent être utilisées. Nous avons notamment développé deux systèmes (dont le premier a été hérité du Laboratoire de Physique des Décharges) :

- Une cellule pointe-grille circulaire permettant de charger une surface en forme de disque de diamètre  $\sim 17\text{mm}$
- Une cellule fil-grille (grille de dimensions  $3,5 \times 115\text{mm}$ ) permettant de charger une surface rectangulaire par balayage (Figure 31). Le temps typique de charge dans ce cas est d'environ 30s dépendant de la surface totale à charger (chaque point de la surface chargé n'étant pas exposé plus de 1s à la décharge corona).

### C.3.4 Charge par contact

Nous avons également réalisé une cellule de charge par contact, au moyen d'un rouleau semiconducteur de charge, initialement développé pour les imprimantes laser par la société Createc Rollers avec laquelle nous avons travaillé. L'intérêt de ce système est double :

- Il met en œuvre un principe de dépôt différent de la décharge corona, et permet donc des comparaisons comme le mode opératoire le demande.
- Il permet la mesure de potentiel simultanément à la charge, le défilement de l'échantillon pouvant permettre de réduire le temps entre charge et mesure, notamment pour une cartographie ligne par ligne d'échantillons relativement dissipatifs, comme l'indique la figure suivante.

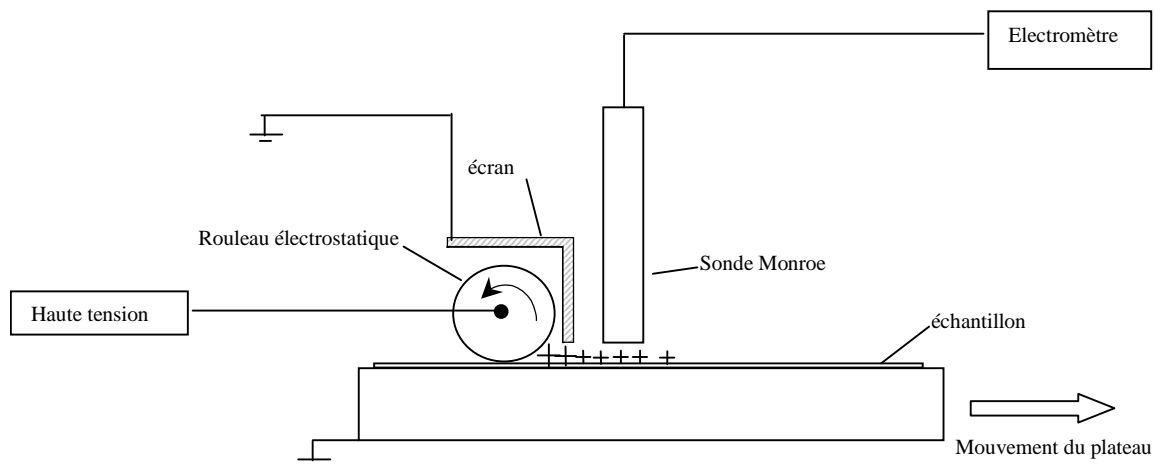


Figure 32 : Charge par rouleau électrostatique

Le principe de transfert de charge du rouleau à la surface est très probablement de type transfert électronique par contact. La distribution de charge de surface déposée est homogène à l'échelle macroscopique, ce qui n'exclut pas une différence à petite échelle dans l'homogénéité des profils avec la décharge corona.

#### C.4 Cartographies de potentiel

Une platine de cartographie du potentiel en deux dimensions, très stable, permet le déplacement de l'échantillon avec un pas dans les deux directions de l'ordre de 0,03 mm, nettement inférieur à la résolution de la sonde.

L'ensemble des commandes de cette platine, moteurs pas-à-pas, électronique d'interface et de conditionnement, et logiciels de commande, a été développé à Supélec. Cela explique probablement un certain côté « bricolage » et perpétuel développement du banc de mesures, mais en même temps aussi confère une grande flexibilité au système. Le mouvement de la sonde par exemple peut être modifié par le logiciel.

La face avant du logiciel de commande et d'acquisition LABVIEW est présentée Figure 34 dans sa dernière version. D'autres programmes utilisent des formes combinées de mesure (de type : charge – déclin de potentiel – cartographie). Il faut signaler que la cartographie est relativement



Figure 33 : Platine de mesures

lente (durées de l'ordre de 20 à 40mn) et donc bien adaptée à des matériaux très isolants seulement.

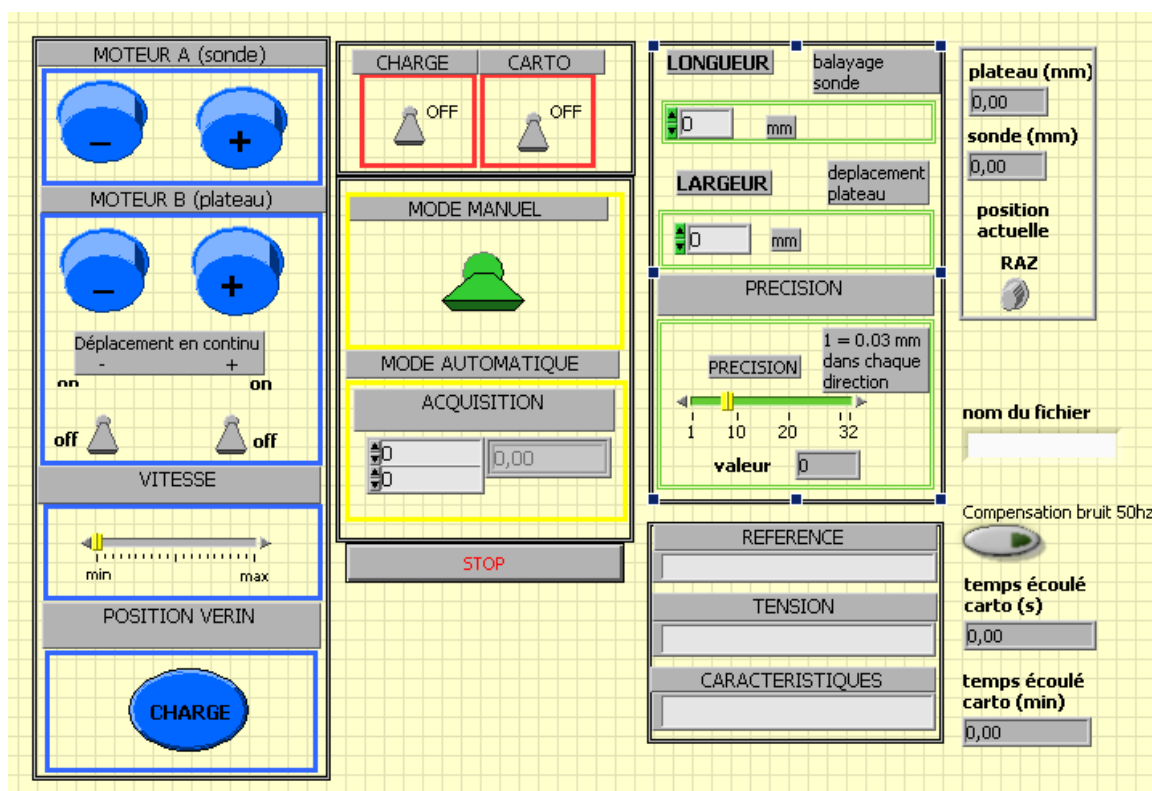


Figure 34 : Face avant du logiciel de cartographie

### C.5 Retour de potentiel

La réalisation pratique des mesures de retour de potentiel suppose un protocole de neutralisation de la surface le plus fiable possible. Cette neutralisation est réalisable par contact (rouleau) ou par décharge corona.

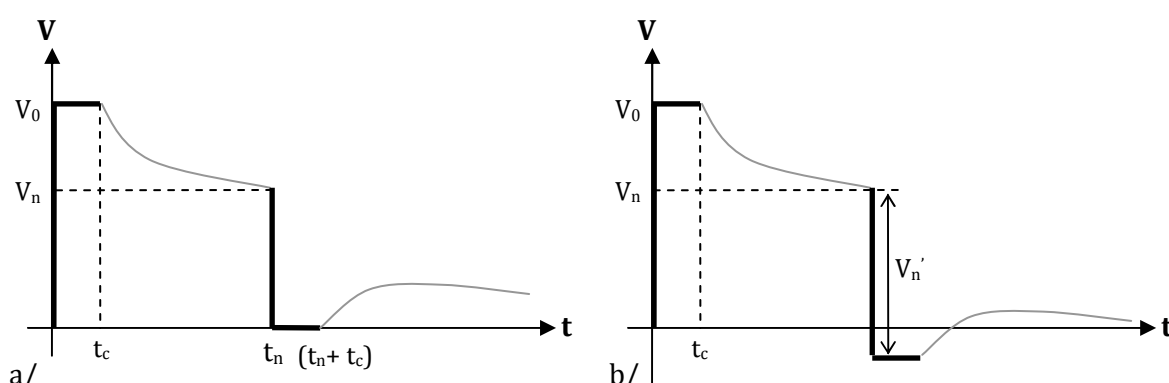


Figure 35 : Mise en œuvre du retour de potentiel

Nous avons automatisé cette fonction : la neutralisation de l'échantillon s'effectue par la fermeture d'un relais court-circuitant la résistance et mettant ainsi la grille à un potentiel nul, et par l'application à la pointe d'une décharge de signe opposée à celle du potentiel de surface à neutraliser. Le temps de neutralisation est choisi systématiquement identique au temps de charge. Cette procédure n'est souvent pas parfaite, et conduit le plus souvent au cas (b), dans

lequel il subsiste un potentiel résiduel, de l'ordre d'une trentaine de volts, mais qui dépend du matériau. Il n'est d'ailleurs pas facile de le distinguer du début du retour de potentiel lui-même.

Si on veut normaliser ces mesures pour les comparer entre elles ou avec les déclins de potentiel, le facteur de normalisation à considérer sera de préférence le crêteau réellement appliqué  $-V_n'$ .

### C.6 Développement d'un banc de mesure de retour de potentiel après polarisation d'un isolant entre électrodes

Le domaine d'application des techniques de potentiel de surface n'est pas seulement celui du continu. Les techniques de retour de potentiel peuvent également être utilisées après une polarisation alternative, si on ouvre le circuit lors du passage par zéro de la tension (Figure 36).

Nous avons développé un banc pour réaliser ce type de mesures, qui concerne donc des isolants métallisés sur leurs deux faces, et potentiellement tous les types de condensateurs (condensateurs plans, câbles, systèmes pointes plan...). Ce banc a été développé lors de la thèse de Pedro Llovera, et il est représenté Figure 37.

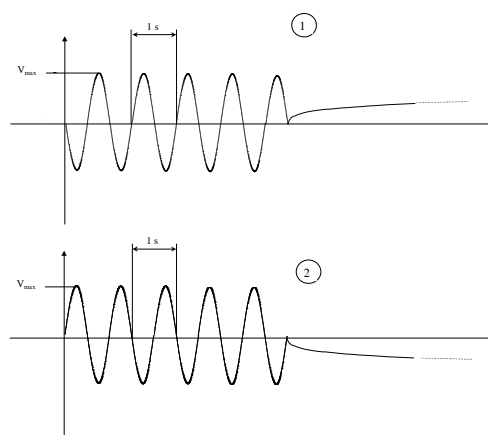


Figure 36 : Retour de potentiel après application d'une polarisation sinusoïdale

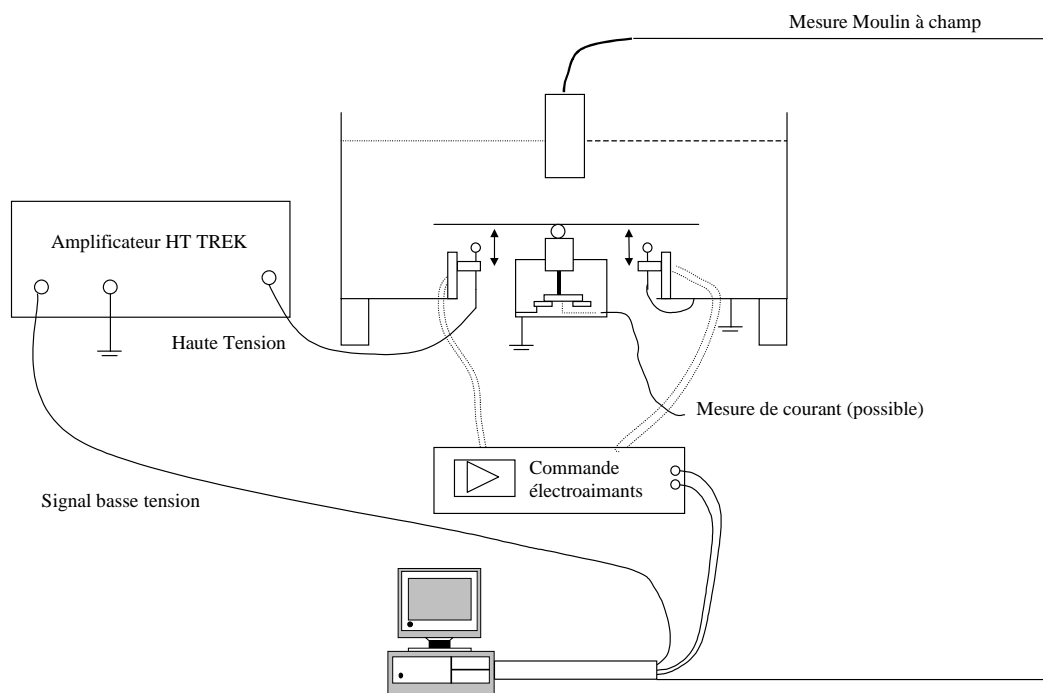


Figure 37 : Banc de mesures de retour de potentiel après application d'une polarisation entre électrodes

Pour éviter toute fuite à travers les relais ouvrant le circuit, nous avons dû utiliser des relais à air, construits avec des électroaimants. Un relais permet d'appliquer la tension de polarisation à l'isolant, l'autre de le court-circuiter temporairement. Pour mesurer le potentiel, nous avons choisi un moulin à champ placé en face d'une grande surface métallique reliée à une électrode de

l'échantillon. Cet appareil mesure le champ électrique et non le potentiel, mais un étalonnage permet de faire la conversion. Cette solution permet de mesurer des potentiels jusqu'à 10kV.

L'échantillon est dans une boîte métallique dont la température peut être contrôlée et qui est pourvue d'une traversée d'une grande épaisseur d'isolant dont on vérifie qu'elle a peu d'influence sur les résultats grâce à sa très faible capacité à la masse et à la valeur négligeable de ses fuites par conduction de surface. Le signal haute tension est généré par un amplificateur haute tension TREK auquel on fournit le signal basse tension à travers le PC ou avec un générateur de signaux.

Ce banc de mesures permet de:

- mesurer le déclin et le retour de potentiel d'un échantillon en continu (suppression du retard lié à la translation entre poste de charge et de mesure) jusqu'à des valeurs théoriques de  $\pm 10\text{kV}$ , avec parfois des problèmes d'apparition de décharges au-delà de 5kV.
- programmer différents types de cycle de tensions, avec des formes et des amplitudes arbitraires (dans la limite de la bande passante de l'amplificateur haute tension) de façon complètement automatisée.
- mesurer le courant pendant la charge en continu.
- chauffer l'enceinte de l'échantillon entre la température ambiante et  $+80^\circ\text{C}$ . La possibilité de conditionner l'atmosphère de l'échantillon (air sec ou azote) n'a pas été utilisée mais peut être envisagée.

Toutes ses possibilités n'ont cependant pas été explorées.

## C.7 Développement de mesures électrostatiques de charge

Les mesures électrostatiques de charge font également partie des techniques qui ont été développées à Supélec, à travers des petits modules développés initialement par Ernesto Martinez pour des mesures sur des tubulures d'essence. Le principe en est classique, mais c'est surtout dans ses détails que la réalisation doit être soignée.

Plusieurs études électrostatiques sur des problèmes appliqués à l'industrie automobile notamment ont été menées grâce à ce type de circuits, par exemple essais sur des tubulures d'essence (Plastic Omnium), mesures sur site sur des réservoirs automobiles (Renault), ou mesure de charge sur des accéléromètres pour systèmes de sécurité automobile (Autoliv). Aujourd'hui nous les utilisons pour mesurer des courants de fuite sur des stators de moteur pour des applications haute température, dans le cadre du projet SEFORA.

L'intérêt d'utiliser ce type de module de mesure de charge pour mesurer des courants de fuite ou des charges d'influence est double :

- En cas de décharge intempestive, c'est l'amplificateur opérationnel d'entrée qui est détruit, et son remplacement est aisé. La mise en œuvre de systèmes de protection en étage d'entrée n'a finalement pas été retenue car, soit de réponse trop lente, soit absorbant une partie du courant à mesurer.
- L'intégration analogique en entrée (suivie éventuellement par une dérivation numérique) permet de capter les signaux de grande dynamique plus facilement qu'un dispositif de mesure de courant, qui est généralement suivi d'un échantillonnage numérique. On risque alors de « rater » les phénomènes très rapides qui peuvent se produire en cas de décharge partielle.

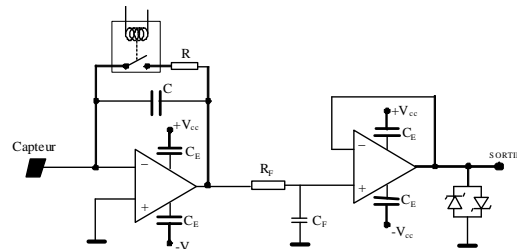


Figure 38 : Electronique de mesures de charges

## C.8 Conclusions - Perspectives

Les idées de développement des techniques électrostatiques ne manquent pas, le problème étant les moyens et le temps à investir pour les développer. Pour nous limiter à ce qui est envisagé dans le court terme, l'idée est le développement de mesures de potentiel de surface à haute température permettant également des mesures de *déclin de potentiel thermostimulé*. Ce développement est devenu nécessaire pour nos travaux dans le domaine de l'aéronautique et du spatial, à la fois parce que les contraintes appliquées nécessitent de connaître le comportement des matériaux à haute température (projet SEFORA), et parce que l'étude de très bons isolants comme le Kapton et le Teflon nécessite une activation thermique plus importante.

Le problème à résoudre est que les sondes de potentiel usuelles ne résistent pas aux températures supérieures à 70-80°C. On peut envisager diverses solutions de balayage, ou des solutions de séparation du chauffage et de la mesure, ce que nous avons fait jusqu'à maintenant. Il serait cependant intéressant de développer des mesures en continu, soit au dessus de la source chaude (par un capteur type moulin à champ), soit à l'intérieur même d'un four. Diverses solutions sont envisagées pour cela également.

Les techniques de potentiel thermostimulées (*Thermostimulated surface potential* TSSP ou *thermostimulated charge decay* TSCD) sont analogues aux courants thermostimulés (TSC) [72]. Dans les deux cas, l'isolant est polarisé à haute température, puis refroidi sous contrainte, et ensuite progressivement réchauffé, la décroissance du potentiel étant mesurée au lieu du courant de décharge. Les résultats de deux expériences sont reliés.

Les techniques de TSSP ont été utilisées pour la caractérisation de polymères depuis le début des années 1980 au Japon, particulièrement à Nagoya [24], et également pour des études sur la stabilité des électrets [73] ou la piézoélectricité [74]. Leur utilité a été démontrée récemment pour caractériser des films très minces (de moins d'un micron) [75]. Des expériences de retour de potentiel thermostimulés ont également été utilisées par des chercheurs japonais pour étudier l'injection de charge à partir d'aiguilles dans le polyéthylène [76].

Développer cette technique à Supélec semble à notre portée et il semble clair d'après la bibliographie qu'elle a été insuffisamment exploitée.

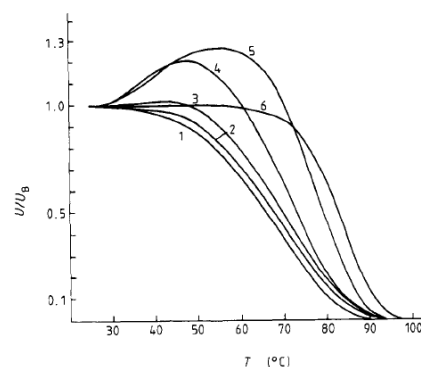


Figure 39 TSSP sur des films de polyacrylonitrile montrant une augmentation anormale du potentiel [76].





## D. Caractérisations de matériaux et systèmes par mesures de potentiel

*La question de savoir s'il y a lieu de reconnaître à la pensée humaine une vérité objective n'est pas une question théorique, mais une question pratique. C'est dans la pratique qu'il faut que l'homme prouve la vérité, c'est-à-dire la réalité, et la puissance de sa pensée, dans ce monde et pour notre temps.*

Karl Marx, Thèses sur Feuerbach

*Si j'en embauche un autre avec votre profil, je coule le Service*

Un de mes anciens chefs de service

### D.1 Caractérisations de résines époxy

#### D.1.1 Introduction

Le travail de thèse que j'ai effectué au Laboratoire de Physique des Décharges, sous la direction de Max Goldman, avec le financement de la société Merlin-Gérin (aujourd'hui Schneider Electric) a été essentiellement consacré à ce matériau, avec comme objectif la compréhension de phénomènes précurseurs menant au contournement d'isolateurs industriels.

Deux axes avaient été suivis, d'une part celui de l'analyse des mécanismes intervenant dans le déclin de potentiel de surface, et d'autre part l'étude des premiers stades de vieillissement sous décharge couronne, la technique de déclin de potentiel étant utilisée ici comme outil de caractérisation de la conductivité de surface du matériau. Nous ne détaillerons pas ici ce deuxième aspect.

Le travail expérimental détaillé que j'avais mené pour comprendre la réponse d'échantillons de résine époxy après un dépôt de charge m'avait mené à remettre en question l'interprétation qui en était généralement donnée dans le laboratoire, car il a montré l'importance des phénomènes de polarisation dans le matériau étudié. Ce travail est détaillé dans une publication [27] jointe en annexe, mais nous allons en résumer l'essentiel ici.

D'autres travaux ont été réalisés plus tard sous mon impulsion sur des films d'époxy par Pedro Llovera, puis sur des plaques composites époxy-fibre de verre FR4 par Delphine Koch.

#### D.1.2 Mise en évidence expérimentale de la polarisation comme facteur principal du déclin

##### D.1.2.1 Matériau étudié

C'est une résine époxyde DGEBA (ester diglycidique de bisphénol A), mélange de monomères et d'oligomères (Figure 40) durcie par un anhydride d'acide.

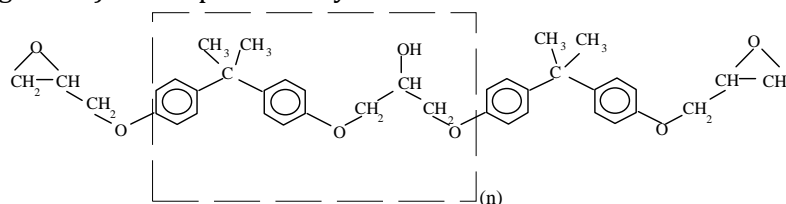


Figure 40 : Formule de la résine époxy DGEBA

Le mélange de la résine avec l'agent durcisseur provoque, par ouverture des cycles époxydes, la formation d'une structure réticulée tridimensionnelle (polycondensation). Divers additifs sont introduits dans la résine : accélérateur, colorant... et une charge minérale pour améliorer sa résistance physique. Les échantillons étudiés sont des disques moulés d'épaisseur 7mm, de 4 types, selon le tableau suivant. (R) est le matériau utilisé industriellement.

Type	(T)	(CH)	(COL)	(R)
Chargé SiO <sub>2</sub>	-	X	-	X
Coloré	-	-	X	X

### D.1.2.2 Expérimental

L'originalité de ce travail a résidé dans le choix d'une série de modes de charge différents, qui sont illustrés dans la figure suivante.

On évalue l'importance de la conduction de surface (comparaison B-C), on compare déclin et retour de potentiel (B-D), différents profils de charge (A-B), différents modes de charge (B-E) et on compare l'ampleur de la polarisation révélée par l'expérience F avec les déclins obtenus en B. Les mesures de l'expérience F sont réalisées par transfert rapide de l'échantillon à intervalles régulier sous la sonde de mesure, puis retour à l'électrode de polarisation.

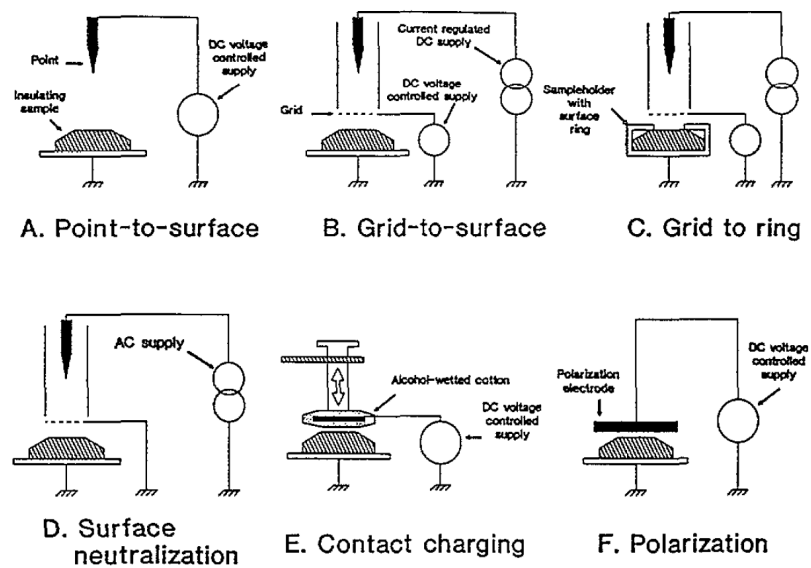


Figure 41 : Différents modes de charge [27]

### D.1.2.3 Résultats

Le résultat principal de ces différents essais était que la réponse de l'isolant n'était que peu affectée par des changements du mode de charge ou de la géométrie. Il était accompagné par la très bonne coïncidence expérimentale entre le potentiel qui se constituait lors de l'expérience de polarisation (F) et le déclin de potentiel (B), comme le montre la Figure 42. On montrait par ailleurs que l'ampleur de ce déclin est proportionnelle à la tension appliquée (linéarité en fonction de V).

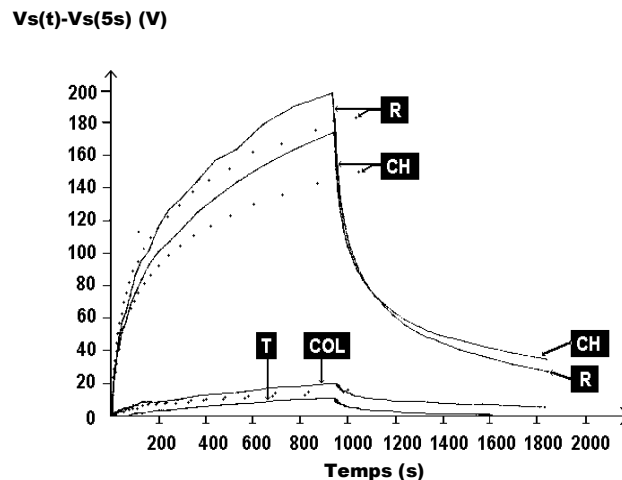


Figure 42 : Comparaison polarisation / déclin de potentiel

Le retour de potentiel était de même forme que le déclin, proportionnellement au créneau de potentiel appliqué. Ce processus apparaissait par ailleurs plus activé par la présence de charge

minérale (comparaison T-CH et COL-R) que par celle du colorant (comparaison T-COL et CH-R). Il était également activé par la température et par l'humidité.

#### D.1.2.4 Interprétation

La réponse de l'échantillon a pu être identifiée à un modèle de fonction d'absorption, (voir §B.3.5). La Figure 43 ci-contre montre que cette fonction, dans les limites de temps considérées, suit la loi de Curie-Von Schweidler, avec un coefficient  $n=0,85$ .

Le phénomène observé est donc un phénomène de polarisation, probablement d'origine dipolaire, très lié à la présence d'une charge minérale et d'humidité, probablement attribuable à la concentration d'humidité aux interfaces résine / silice. Cette hypothèse a été étayée par la littérature (voir [27] pour plus de détails).

L'absence de manifestation de l'injection de charge dans ce cas n'est pas étonnante, vue la faible valeur du champ (inférieur à 0,3 kV/mm). Cela permet cependant de confirmer qu'un certain nombre de modèles d'injection de charge publiés pour rendre compte d'expériences dans des contextes proches de celui-ci ont probablement été appliqués à mauvais escient !

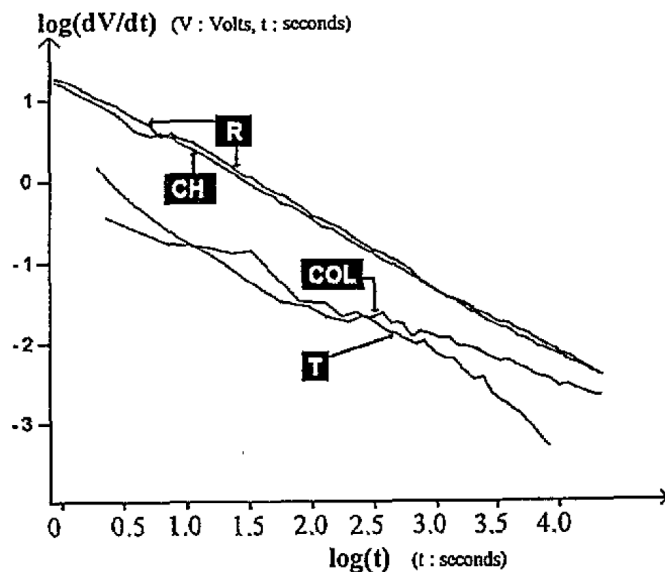


Figure 43 : représentation  $\log(dV/dt)=f(\log t)$

#### D.1.3 Mise en évidence d'effets non linéaires, attribués à l'injection de charge.

Dans le cadre de la thèse de Pedro Llovera, nous avons essayé de prolonger mon travail précédent, en quantifiant les valeurs de champs pour lesquels apparaissent des effets non linéaires dans des résines époxy. Il n'a cependant pas été possible d'utiliser les mêmes échantillons, car les valeurs élevées de potentiel à appliquer pour observer ces phénomènes auraient imposé de travailler sous pression ou sous un vide poussé, ce qui dépassait nos moyens expérimentaux. Nous avons donc travaillé sur des films d'époxy (également fabriqués à partir d'une résine DGEBA) d'épaisseur 190  $\mu\text{m}$ , fournis par Virginie Griseri, et métallisés de différentes manières avec de la laque d'argent ou du noir de carbone. La particularité est ici d'avoir une métallisation sur les deux faces.

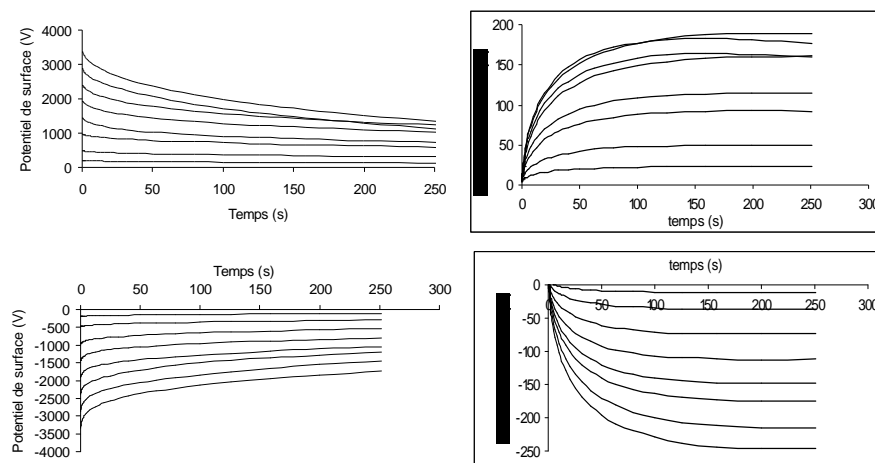


Figure 44 : Déclin et retour de potentiel pour différentes tensions initiales (époxy 190 $\mu\text{m}$ )

La Figure 44 montre le résultat d'expériences de déclin et retour de potentiel à 25°C sur ce matériau. Le phénomène linéaire, supposé dipolaire, est prédominant, et les effets non-linéaires, attribués à l'injection de charge, apparaissent seulement en polarité positive, pour des champs de 15 à 20 kV/mm ; ce résultat ayant été corroboré, sur les mêmes échantillons par des mesures de PEA détectant une injection de charge à partir de 18 kV/mm.

L'utilisation de la représentation  $tdV/V_0dt = f(\log t)$ , normalisée par le potentiel initial  $V_0$ , permet de préciser ce phénomène. La Figure 45 montre, dans un certain contexte de métallisation (argent et noir de carbone), une réponse parfaitement indépendante du champ.

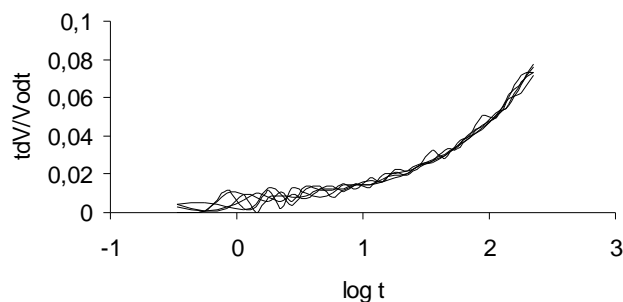


Figure 45 : Représentation en  $tdV/V_0dt$  (normalisation par le créneau de tension appliqué)

Epoxy 190 $\mu$ m métallisé argent + noir de carbone,  $V_0 = \pm 3000V, \pm 2000V, \pm 1000V$ .

Dans un autre contexte, où on applique une polarisation plus élevée ( $\pm 3500V$ ) en alternant les polarités sur le même échantillon, on voit apparaître une déviation à cette linéarité, qui apparaît sous forme de « pics » sur la représentation, dont la position évolue à la suite de la répétition de l'expérience, et qui finissent par disparaître (Figure 46).

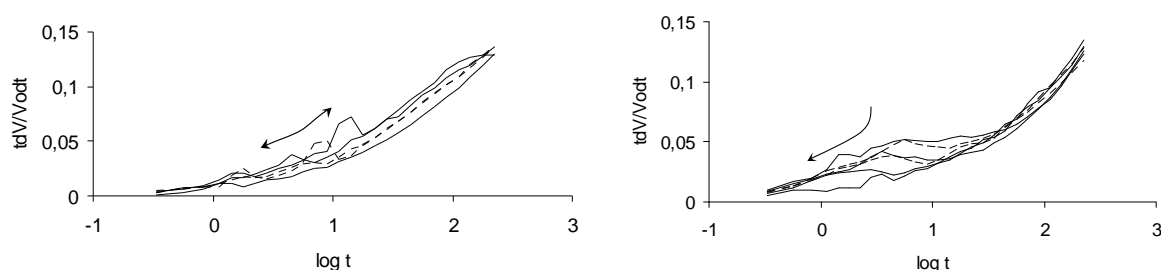


Figure 46 : Phénomènes transitoires apparaissant lors de l'application de créneaux répétés de potentiel

Epoxy 190 $\mu$ m, Polarisation  $\pm 3500V$ . Déclins de potentiel représentés en polarité positive (à gauche) et négative (à droite), pour la même suite d'expériences

On a ainsi une sorte de conditionnement, interprété comme une saturation de sites émissifs à l'interface métal isolant. Mais il est possible aussi que l'apparition de décharges de surface locales sur la ligne triple de contact isolant/métallisation/ air ait joué un certain rôle dans ce phénomène.

### D.1.4 Réponse d'une cavité dans un composite époxy-fibre de verre FR4

Lors du travail de thèse de Delphine Koch, nous avons essayé d'évaluer l'influence d'une cavité sous un revêtement polymérique en effectuant des essais sur des composites époxy-fibre de verre de type FR4 utilisés pour les circuits imprimés, avec une géométrie représentée Figure 47.

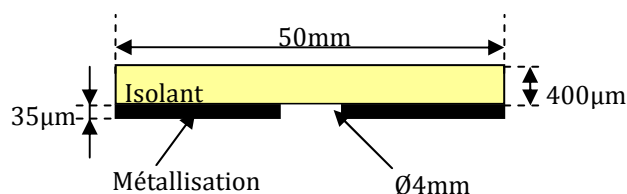


Figure 47 : Echantillon FR4 avec cavité artificielle

Sur un tel système, pour des potentiels appliqués de 100 à 2000V, les mécanismes mis en jeu semblent d'une grande complexité et sont impossibles à détailler ici. Deux mécanismes physiques ont été mis en évidence, polarisation et injection de charge.

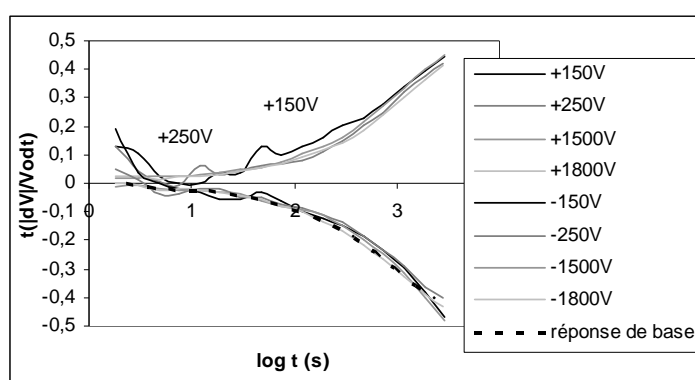


Figure 48 : Déclin de potentiel pour différentes tensions de charge  
SANS cavité

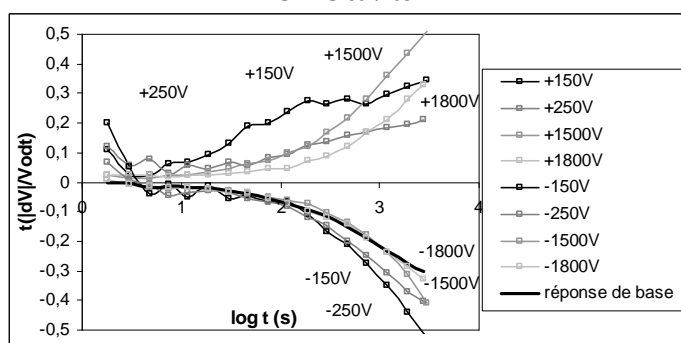


Figure 49 : Déclin de potentiel pour différentes tensions de charge  
AVEC cavité

En l'absence de cavité, la réponse est proche de ce qui a été obtenu par Llovera. Il est assez aisé d'identifier une « réponse de base » indépendante du champ, modélisable par une fonction d'absorption et identifiable à une polarisation dipolaire.

La présence de la cavité rend le phénomène plus irrégulier, mais permet de retrouver cette réponse de base, plus faible cependant, car la cavité réduit le champ dans l'isolant.

La difficulté de la modélisation concerne ici les irrégularités de la réponse, qui existent de manière fugitive sans cavité mais sont intensifiées par sa présence. Le problème est qu'elles sont mis en évidence ici pour les champs les plus faibles (à +150 et +250V) et non pour les champs les plus élevés.

Une modélisation de ce phénomène a été suggérée par le fait qu'il semble être accéléré par le champ, sans que son ampleur n'augmente. On a donc proposé un modèle d'injection à partir de la surface inférieure de la plaque isolante, dont l'amplitude soit limitée par la dissymétrie de l'échantillon (qui est visible sur des images au MEB de sa tranche).

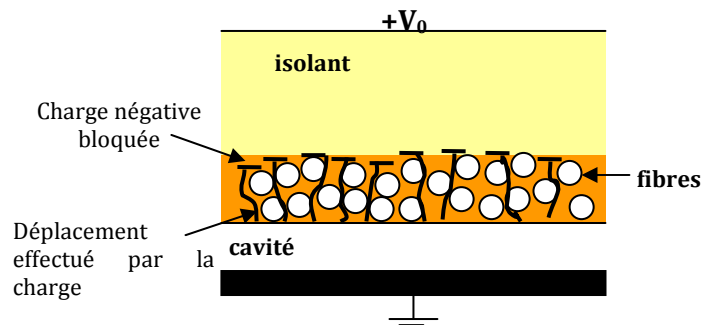


Figure 50 : Modèle de structure et d'injection de charge dans FR4

Ce modèle est évidemment sujet à discussion, mais qu'il soit confirmé ou non, ces essais ont eu l'intérêt de mettre en évidence la possibilité de détecter des cavités par notre technique de mesure.

## D.2 Caractérisation de films de polypropylène d'épaisseur 6µm à différents niveaux de charge et de température

### D.2.1 Introduction

Le polypropylène est un des polymères les plus utilisés en isolation. L'homopolymère utilisé pour les films techniques du Génie Electrique est le polypropylène isotactique (iPP), semicristallin (Figure 51). Les faibles pertes diélectriques de ce matériau ainsi que leur stabilité avec la fréquence sont les raisons principales de son utilisation dans les condensateurs de puissance, où il est utilisé comme diélectrique sous forme de film biétiré mécaniquement, imprégné ou non.

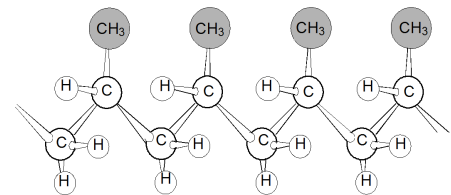


Figure 51 : Polypropylène isotactique

Nous avons fait plusieurs séries d'études sur ce type de films, avec différentes épaisseurs (entre 6µm et 200µm), certaines dans le cadre d'un contrat avec la société Bolloré, et d'autres qui ont fait l'objet de publications (par exemple [29]). Nous allons présenter uniquement ici les travaux de thèse de Pedro Llovera [1], qui sont une excellente application de la méthodologie que nous avons présenté plus haut. Ils sont détaillés dans un article [31] joint en annexe, aussi nous allons nous limiter ici aux résultats essentiels, et en nous limitant aux aspects liés au potentiel de surface. Des mesures de courants ont été également réalisées et analysées de manière très détaillée, qui dans l'ensemble sont cohérentes avec les modélisations du déclin de potentiel, mais nous renvoyons à la thèse de Llovera.

Le matériau utilisé pour ces travaux est le film de 6 µm biétiré. Différentes configurations de métallisation et d'état de surface ont été utilisées (aluminium, laque d'argent, traitement corona...). Nous avons choisi systématiquement des représentations  $tdV/dt=f(\log t)$ .

### D.2.2 Réponse de base

En suivant la méthodologie définie §B.4.3, nous avons pu identifier une réponse de base, identique pour les faibles tensions en corona positif, ou en charge par rouleau négative et pour des tensions positives relativement plus élevées (jusqu'à 1700V) pour des charges par rouleau.

La métallisation de la contre électrode à l'aluminium ne modifie pas dans ces conditions cette réponse par rapport à un échantillon non métallisé. La forme de cette réponse à 25°C en représentation  $tdV/dt=f(\log t)$  est donnée ci-contre pour 3 cas différents.

Avec la température cette réponse est activée et la pente de la droite augmente, puis un pic apparaît. Elle est légèrement activée par le potentiel de charge (relation non linéaire).

L'analyse de cette réponse « de base » a montré qu'elle n'est pas de type dipolaire (il n'y a pas de retour de potentiel correspondant, le matériau est peu polaire) mais sa symétrie et son indépendance des interfaces font penser qu'il s'agit d'un phénomène volumique, probablement une *conduction* homogène dans le volume.

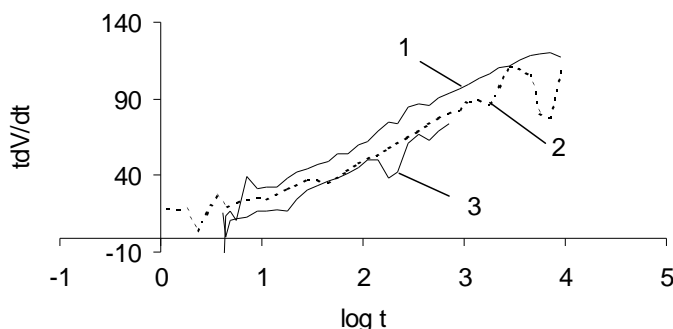


Figure 52 : Réponse de base du polypropylène

Film 6µm métallisé Al

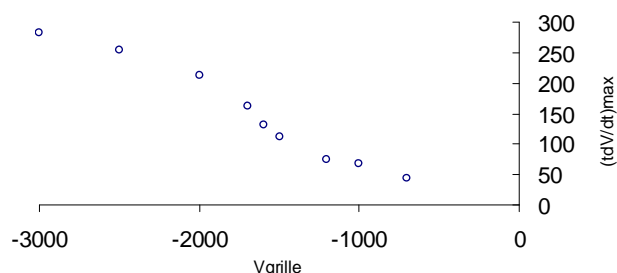
1 = charge rouleau +1600V

2 = charge corona positive +1600V

3 = charge rouleau -1600V

### D.2.3 « Pic A » attribué au dépiégeage de surface de la charge injectée pendant la décharge couronne.

Ce pic (Figure 54 et Figure 55) apparaît uniquement lorsque l'échantillon est chargé par décharge couronne négative, indépendamment de la métallisation de la contre-électrode (aluminium, argent et non métallisé), et disparaît quand la charge se fait par rouleau. Il est centré à 25°C autour de 10s (accéléré pour des températures supérieures) et ne neutralise pas complètement l'échantillon (quelque soit la température).



Son amplitude dépend de l'intensité de la décharge couronne, du potentiel de charge de la surface et du point où est mesuré le déclin. Il est souvent accompagné de profils irréguliers. Comme le montre la Figure 53, il est activé par le champ de manière non linéaire (1000 V correspond à 166kV/mm).

Figure 53 : Amplitude du « pic A » en fonction du potentiel

L'interprétation de ce pic A que nous avons construit pour rendre compte de tous les essais réalisés par Pedro Llovera (incluant les mesures de courant et par l'application des neutres de la décharge seulement) est la suivante : il est lié à la décharge couronne négative et on l'interprète comme un dépiégeage progressif de la charge injectée dans la couche de surface pendant la décharge couronne sous l'action combinée du champ électrique et des espèces neutres excitées.



On a montré que le temps caractéristique du pic correspondrait au *temps de dépiégeage* des charges plutôt qu'à leur temps de transit et l'amplitude à la quantité de charge piégée.

On peut représenter cela avec le schéma représenté Figure 8, au §B.3.7.4. La décharge couronne peuple les états de surface du polypropylène suivant une distribution énergétique, et réussit aussi à injecter des électrons dans les états de conduction du volume. On suppose dans ce modèle deux étapes: le transfert de la charge des ions dans les états électroniques de la surface et l'injection progressive dans le volume des charges de ces états de surface (injection dans laquelle on suppose que le temps de transit est négligeable par rapport aux constantes de temps du dépiégeage).

Dans ce modèle, la forme du pic A est donc corrélée avec l'énergie des pièges de surface, de la même manière que dans le modèle d'énergie de démarcation, avec les pièges en volume. L'application au pic A des raisonnements relatifs à l'énergie de démarcation permet de donner l'allure de cette répartition en énergie des pièges, qui est donnée Figure 54. On trouvera plus de détails sur cette modélisation et ces calculs dans la thèse de Pedro Llovera [1] et dans [31].

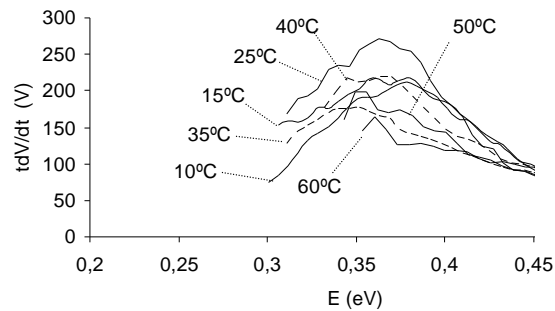


Figure 54 : Application du modèle de l'énergie de démarcation au « pic A »

#### D.2.4 « Pic B » attribué à l'injection et à la conduction ioniques

Lorsqu'on augmente la température, il apparaît un pic « B » qui se superpose à la réponse de base, pour les temps caractéristiques de l'ordre d'une heure, comme le montre la Figure 55 par exemple pour la polarité négative.

Dans les deux polarités, après le pic B, l'échantillon est complètement déchargé, mais le pic en polarité positive (non représenté ici) est plus important et sa constante de temps un peu plus faible.

Ces pics sont fortement activés et accélérés par la température, mais moins dépendants du potentiel de la surface (dépendance presque linéaire) que le pic A, et leur temps caractéristique ne varie pas avec la tension.

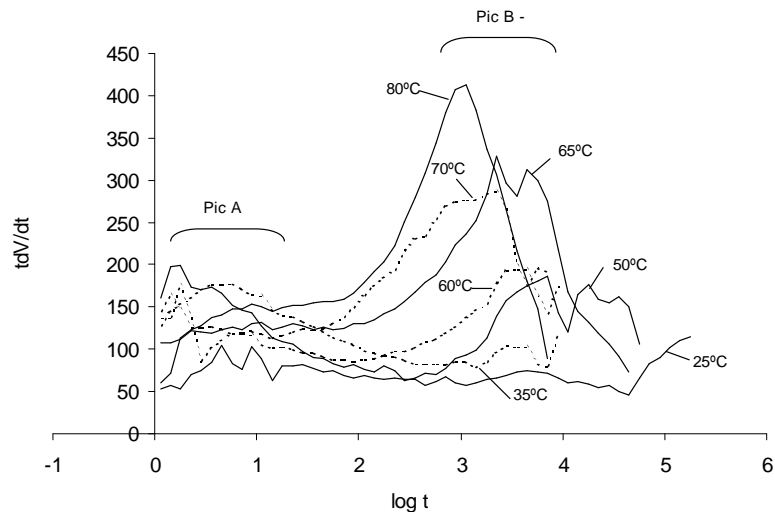


Figure 55 : Courbes de déclin isotherme à différentes T

Films PP 6µm métallisés aluminium

$V_0 = -2000V$ , charge par décharge couronne

A 70°C, il apparaît un retour de potentiel qui est pratiquement inexistant à 25°C, et qui n'a pas les caractéristiques du retour calculé par le modèle linéaire décrit §B.3.5. Il est donc attribué à un retour de charges injectées dans le volume plutôt qu'à une polarisation dipolaire.

Le pic B est donc interprété comme lié à une *injection de charge*, favorisée en polarité positive. Une hypothèse possible pour expliquer ce pic, cohérente avec la littérature sur les mécanismes

de conduction du polypropylène à chaud, est celle d'une *conduction ionique extrinsèque*, c'est à dire des ions déposés par la décharge couronne qui pourraient s'injecter lorsque la température augmente. Les différences exhibées entre les polarités viendraient donc des différentes mobilités des ions déposés par chaque décharge. Dans le cas d'une injection des ions corona dans le volume, l'abscisse du pic B correspondrait alors à un *temps de transit* de ces ions dans le volume. Il est cependant probable que cette injection est combinée avec une *conduction ionique intrinsèque* dans le volume. Cette hypothèse est la plus cohérente pour expliquer l'amplitude des retours observés.

### D.2.5 « Pic C » attribué à l'émission à la contre-électrode.

Pour les potentiels de surface élevés en positif, il apparaît un pic assez large centré autour de  $10^2$  s qui se superpose au déclin de base (Figure 56).

Contrairement au pic A, on voit que ce phénomène n'est pas dépendant du type de charge réalisé, et par ailleurs aucun effet de l'exposition aux neutres n'est observé sur ce phénomène. En revanche, sur les échantillons non métallisés, on n'observe jamais ce pic C. On en déduit que ce pic est associé à une *injection de charge* à partir de la contre-électrode.

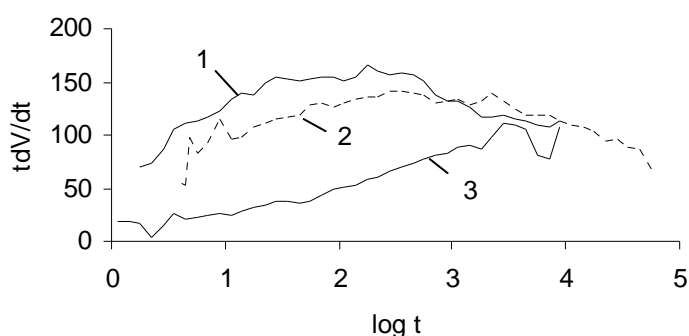


Figure 56 : Pic C et comparaison avec la réponse de base

PP 6 $\mu$ m métallisé Al

1: charge par décharge couronne à +2000V.

2: charge par rouleau électrostatique à +2000V.

3: réponse de base (charge par corona +1600V).

Dans cette hypothèse, cela signifie que des porteurs de charge négatifs peuvent franchir la barrière de potentiel entre la métallisation et les états de surface du polymère pour passer dans la bande de conduction de l'isolant pour un champ élevé, de l'ordre de 300kV/mm. C'est le champ qui est le principal facteur d'activation du pic C.

Remarquons que ce type d'observation n'est pas exceptionnel ; au contraire, c'est la bonne qualité de la métallisation qui est à souligner ici, et le champ élevé nécessaire pour observer cette injection à la contre-électrode. Sur des films de polyéthylène basse densité chargé par corona, des mesures PEA ont pu mettre en évidence une telle injection de charge à la contre-électrode pour des champs de l'ordre de 25 kV/mm [77].

## D.3 Étalement et injection de charge sur des films de polyéthylène téréphtalate (PET)

### D.3.1 Contexte et paramètres expérimentaux

Ces mesures ont été effectuées par Delphine Koch dans le cadre de l'opération Matériaux Diélectriques du GdR CNRS ME<sup>2</sup>MS « Synergie des contraintes et durabilité des isolants organiques », pour laquelle le PET a été choisi comme matériau de référence [3]. Elles ont montré notamment l'importance des phénomènes d'étalement de charge sur des films de ce matériau, avec des directions préférentielles, et l'effet de la décharge corona sur l'injection de charge.

Les cartographies de potentiel présentées ici ont été obtenues sur des films de PET semi-cristallin d'épaisseur 23 $\mu$ m métallisés sur une face à l'or par évaporation. Les échantillons sont

chargés initialement à +2000V, les échelles de potentiel sont données en volts, les dimensions sont de 45/45mm avec une mesure tous les 0,5mm (excepté Figure 58 : 35/35mm, pas de mesure 0,35mm). Le champ initial moyen calculé est donc de  $87kV/mm$ .

On utilise différentes valeurs du courant de décharge corona, pour une même valeur de potentiel appliqué, entre 8 et 40  $\mu A$ . Ces mesures ont été réalisées à une température de 20°C et une humidité relative d'environ 50%.

### D.3.2 Etalement de la charge

Une cartographie de potentiel typique sur ce type de film après charge et évolution longue (ici 21 heures) est donnée Figure 57. On voit apparaître une déformation de la zone chargée, la sommation du potentiel sur la surface n'évoluant pas beaucoup dans le temps (dans certains cas, des remontées assez délicates à expliquer de ce potentiel intégré sont même observées). Des directions préférentielles assez nettes apparaissent, que nous n'avons pas pu relier à des paramètres physiques du matériau.

Ces déplacements latéraux sont parfois symétriques, et peuvent donner des résultats spectaculaires. La Figure 58 donne la répartition du potentiel au bout de 15 jours, après une succession de charges appliquées à quelques jours d'intervalle (avec le même diamètre de zone chargée à chaque fois), avec une alternance de polarité.

L'élargissement progressif de la distribution est manifeste.

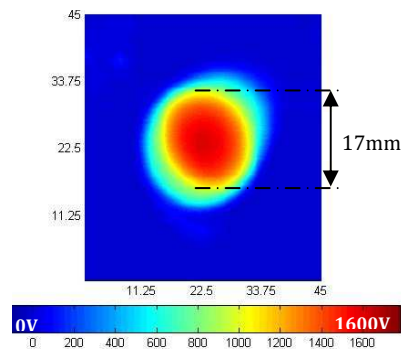


Figure 57 : Cartographie de potentiel sur PET

Charge corona  $20\mu A$  +2000V, 21h après charge

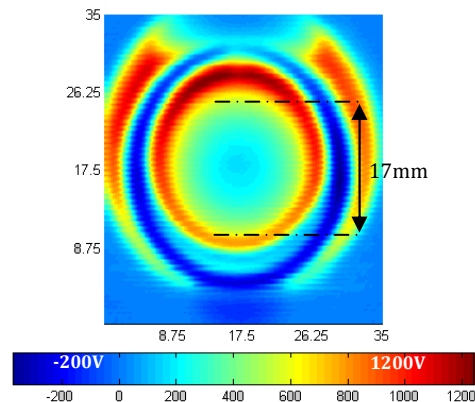


Figure 58 : Cartographie de potentiel sur PET

Dépôts de charge positifs et négatifs successifs

### D.3.3 Cartographies différentielles de potentiel

Après un dépôt de charge initial ( $V_0=2000V$ ), des séries de cartographies ont été réalisées. A partir de ces données, nous avons calculé des « cartographies différentielles » par simple différence des potentiels entre deux cartographies successives réalisées durant le déclin. Cela permet d'illustrer les zones de perte ou gain de potentiel sur la surface de l'échantillon, et donc de représenter la dynamique de déplacement des charges. Deux exemples en sont donnés ci-dessous, qui illustrent le déplacement des charges et l'effet du courant corona sur l'injection.

#### D.3.3.1 Faible courant de charge

Figure 59, le courant de charge corona est  $8\mu A$ . On voit essentiellement un déplacement latéral de la charge, qui s'effectue vers la gauche. Nous avons soigneusement vérifié qu'il ne pouvait s'agir d'un artefact expérimental et qu'aucun déplacement relatif entre l'échantillon et la zone cartographiée ne pouvait avoir eu lieu entre les cartographies (la commande par moteur pas à

pas assure une précision de l'ordre de  $30\mu\text{m}$ ). La « tâche » qui se charge progressivement correspond ici à une gouttelette d'eau qui avait été déposée en surface puis s'était évaporée, laissant une trace légère, entraînant visiblement une conductivité de surface plus importante.

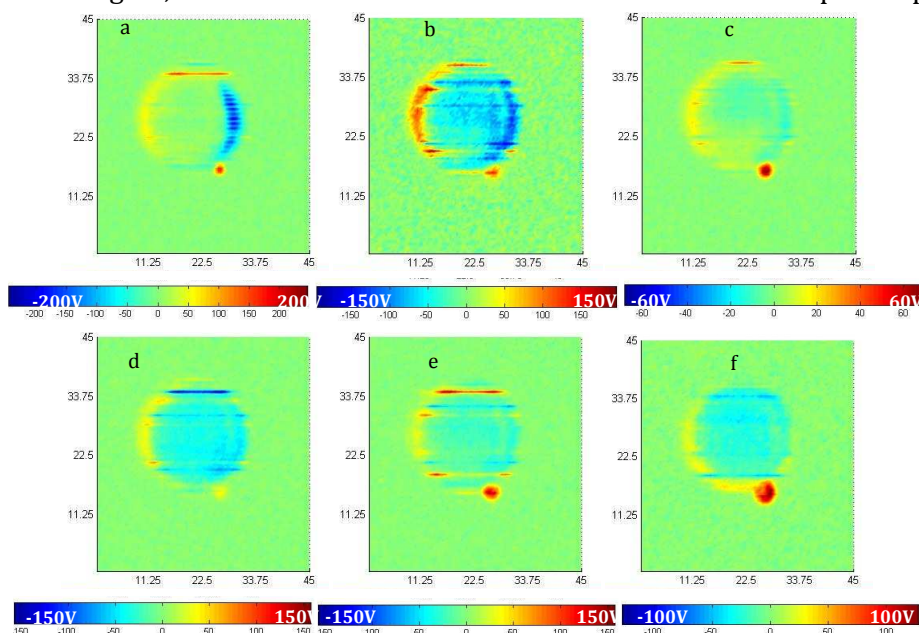


Figure 59 : Cartographies différentielles sur PET, courant de charge  $8\mu\text{A}$   
(a : entre 15min et 1h, b : 1h et 2h, c : 2h et 2h30, d : 2h30 et 3h, e : 3h et 4h, f : 4h et 5h)

### D.3.3.2 Fort courant de charge ( $40\mu\text{A}$ )

La Figure 60 représente le même type de cartographies différentielles sur un échantillon analogue et avec le même potentiel initial, mais avec un courant de pointe pendant la charge de  $40\mu\text{A}$ . On retrouve une direction préférentielle de la migration des charges sans lien avec le gradient de potentiel, mais également une baisse progressive du potentiel de la zone centrale de la distribution de charge, qui était absente sur les cartographies différentielles de la figure précédente. Cette baisse est interprétée comme l'injection de la charge dans cette zone.

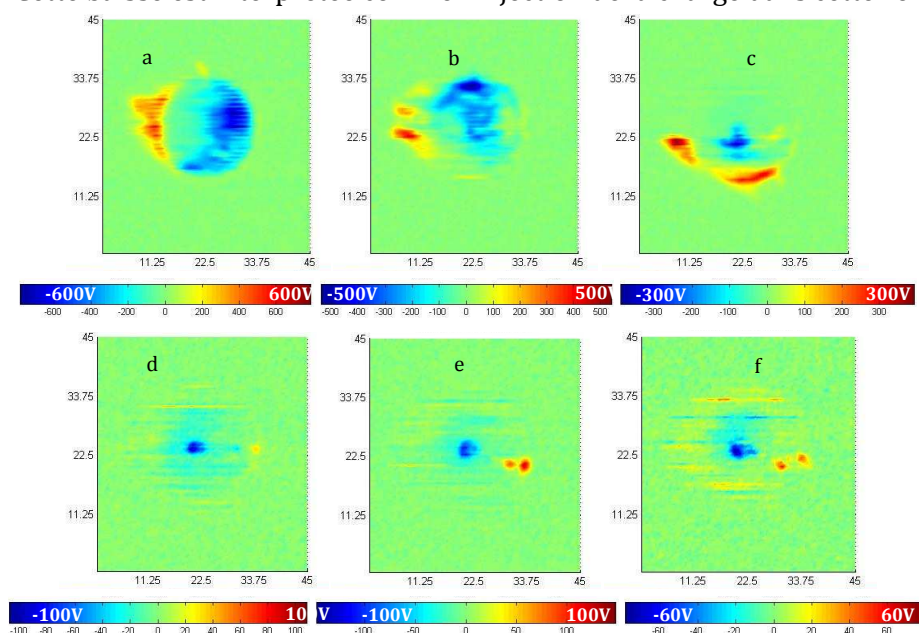


Figure 60 : Cartographies différentielles sur PET, courant de charge  $40\mu\text{A}$   
(a : entre 15min et 1h30, b : 1h30 et 2h, c : 2h et 2h30, d : 2h30 et 3h, e : 3h et 4h, f : 4h et 4h30)

### **D.3.4 Intérêt de ces résultats**

#### ***D.3.4.1 Injection de charge***

L'effet de la décharge corona sur l'injection de charge est connu depuis longtemps, et il est illustré ici de manière très visuelle par les cartographies différentielles. Un aspect intéressant, qui a en revanche été négligé jusque là, et que nous avons déjà souligné pour d'autres matériaux, est la dynamique relativement lente de ce phénomène, qui montre que l'énergie de la décharge corona influe sur le long terme en quelque sorte la dynamique du déclin. Ce fait peut s'expliquer en considérant que la charge injectée par la décharge corona ne reste pas dans des niveaux de transport, mais qu'elle va se repiéger rapidement, en surface ou en volume, et que ce qu'on observera sera lié à la dynamique de dépiégeage de cette charge (ces pièges étant tout de même moins profonds que ceux de la surface où la charge serait déposée en l'absence d'activation corona).

#### ***D.3.4.2 Effets anormaux***

La migration latérale des charges a déjà été reportée plusieurs fois sur le PET dans le passé [46]. L'irrégularité de la migration superficielle dans notre cas s'explique en premier lieu par un état de surface mal défini. Cependant nos observations ont montré certains faits curieux, et reproductibles, qui impliquent que ce n'est pas seulement le gradient latéral de charge ou la conductivité de la surface qui explique la migration. En effet, nous observons sur des cartographies différentielles comme celles de la Figure 59 le fait que l'augmentation du potentiel d'un côté de la distribution n'est pas compensée par une baisse correspondante de potentiel dans une zone proche, mais au contraire dans une zone lointaine où le gradient de potentiel est pourtant dans une direction opposée. On observe donc en certains points une augmentation du potentiel délicate à interpréter en termes de simple conduction, car des déplacements de charge semblent se produire dans une direction opposée au champ.

Nous avons envisagé diverses interprétations, et privilégié l'hypothèse de forces physico-chimiques du type tension superficielle qui puissent amener la charge dans le matériau à migrer et à se regrouper suivant des lignes préférentielles. Ce type de modélisation reste cependant à développer et à confronter à la littérature sur la physicochimie du PET.

## ***D.4 Injection de charge sur des plaques d'élastomères silicones***

### **D.4.1 Contexte**

Les mécanismes de transport et d'injection de charge dans les élastomères silicones, pourtant de plus en plus utilisés en isolation, que ce soit pour le gainage de câbles ou pour les isolateurs composites, ont fait l'objet de fort peu d'études. Ce sont les propriétés de surface, notamment le recouvrement de l'hydrophobie, qui ont fait l'objet de la préoccupation industrielle la plus forte, et ont été les plus étudiées, et les études sur les propriétés électriques volumiques se sont souvent limitées à la spectroscopie diélectrique. L'étude de l'injection et du transport de la charge dans ces matériaux est donc un domaine de recherche relativement inexploré.

Nous avons effectué une étude détaillée, dans le cadre du stage de fin d'études ingénieur de Daniel Alvarez en 2004, et les résultats que nous avons obtenus font apparaître pour certaines formulations un comportement extrêmement original, très différent des polyoléfinés.

### **D.4.2 Quelques résultats**

Nous avons étudié des plaques d'élastomère silicone vulcanisé à chaud (EVC), fortement chargées en alumine, d'épaisseur 2mm. Plusieurs formulations ont été étudiées. Le champ maximum appliqué est faible, inférieur dans tous les cas à 1 kV/mm.

La cartographie de potentiel sur une plaque déposée sur son porte échantillon (en laiton) et chargée par balayage avec notre dispositif fil-grille montrait de nombreuses hétérogénéités qui ont d'abord été attribuées au matériau mais après de nombreuses séries d'essais, nous nous sommes rendus compte qu'elles étaient avant tout liées au contact entre la plaque et le porte échantillon en laiton, au point que dans la plupart des cas, la rotation de la plaque d'un quart de tour ne se traduisait pas par une rotation des hétérogénéités observées ! (Nous avons vérifié l'absence d'hétérogénéité du dépôt de charge lui-même). Pour vérifier cette influence du contact à la contre-électrode, une série de plaques a été métallisée par une peinture au noir de carbone, en laissant libre une zone en forme caractéristique de "V". Les résultats ont été très nets : le phénomène implique une importante injection de charge à partir de la surface métallisée.

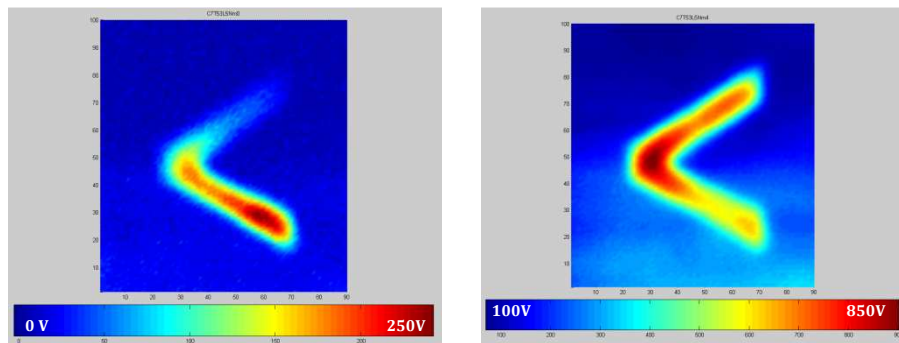


Figure 61 : Cartographie (100mmx100mm) après métallisation évidée en « V »  
après charge à +2000V et de 30mn d'attente (bas de la cartographie) à 90mn(haut).  
A gauche : plaque initialement déchargée. A droite : 3<sup>ème</sup> charge successive

L'analyse plus détaillée de ce phénomène par des mesures de déclin de potentiel « ponctuelles » a montré que le temps d'effondrement du potentiel dans les zones où la plaque est métallisée est rapide, inférieur à quelques minutes. Cela donne donc une borne supérieure du temps de transit des porteurs de charge  $\tau$  à travers la plaque, ce qui permet d'estimer une mobilité  $\mu = L^2/V\tau$  ( $L$  épaisseur,  $V$  potentiel initial) de la charge supérieure à  $10^{-7} \text{cm}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$ .

Cependant, dans les zones non métallisées, où l'on peut supposer l'interface bloquante, un déclin de potentiel nettement plus lent et relativement reproductible a été observé, et attribué à la polarisation dipolaire du matériau.

Enfin, l'apparition d'un potentiel important a été observée sur ces plaques, lorsqu'un simple frottement était effectué entre la surface inférieure et le porte-échantillon, sans apport de charge extérieur. Ce phénomène n'est explicable que par des phénomènes de transport de la charge qui ne sont pas liés au champ électrique.

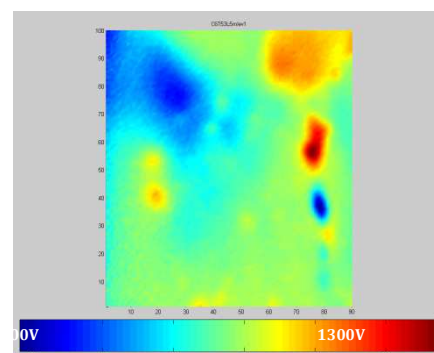


Figure 62 : Cartographie (100x100mm) de potentiel  
après décollement, rotation et repositionnement d'une plaque  
initialement neutre

Il est possible que ces deux observations spectaculaires (injection importante à champ très faible et phénomènes de transport « anormaux ») soient liées à l'existence dans ce type de matériaux de mécanismes qui assurent le recouvrement d'hydrophobicité du matériau et justifient son emploi comme revêtement des isolateurs. En effet, une altération chimique de la



surface du matériau sera rapidement compensée par des restructurations internes, faisant intervenir notamment la migration d'oligomères à faible poids moléculaire, de telle sorte que les fonctions polaires sont éloignées de la surface. Ces phénomènes sont bien connus, et ont été maintes fois étudiés (Cherney 1999, Yoshimura et al. 1999, Moreno et al. 2001). Des phénomènes comparables peuvent-ils intervenir lors d'une simple charge du matériau, à la suite du contact avec un métal ou à la suite d'un dépôt d'ions par la décharge couronne ? Nous manquons d'information sur cette question, mais ce type d'hypothèse semble plausible, notamment pour expliquer un transport de la charge apparemment opposé à une conduction due au champ électrique appliqué.

## D.5 Caractérisation de systèmes de peintures anticorrosion vieillis

### D.5.1 Contexte

Nous avons effectué depuis 1995 plusieurs études, soutenues par la Direction des Construction Navales (DCN), puis par la Délégation Générale pour l'Armement (DGA) et le Laboratoire des Ponts et Chaussées (LCPC), portant sur l'application des mesures de potentiel de surface à l'analyse de l'état d'une peinture anticorrosion vieillie.

Ce type d'analyse est nécessaire, à la fois sur site, pour évaluer le degré d'urgence d'une intervention de remise en état (diminuer le coût de la maintenance), ou en laboratoire, associé à des cycles de vieillissement accélérés, pour produire un indice quantitatif de la qualité d'un revêtement et contribuer à la normalisation. Les applications sont nombreuses comme par exemple dans l'industrie navale pour le contrôle des coques, l'industrie de l'énergie pour le contrôle des pylônes électriques, etc...

Diverses techniques de caractérisations existent par ailleurs, comme les mesures de spectroscopie d'impédance électrochimique, qui caractérisent l'effet barrière d'une peinture, ou les mesures de potentiel par sonde de Kelvin électrochimiques, ou encore les mesures de thermographie infrarouge ou d'émission acoustique, qui permettent en principe de détecter des cavités sous un revêtement. Elles peuvent être corrélées à des techniques destructives, comme l'ablation du revêtement qui permet de voir les zones corrodées après vieillissement, ou les tests d'arrachement.

Les résultats obtenus par la technique de potentiel de surface ont montré des résultats prometteurs, et offrent une information complémentaire à celles issues de ces techniques.

### D.5.2 Sensibilité de la technique

Les premiers travaux que j'avais effectués à Supélec sur des revêtements vieillis au brouillard salin ou à l'humidité chaude, ont montré qu'un début de vieillissement, invisible à l'œil nu, était détectable par des cartographies de potentiel. La visualisation est notamment spectaculaire au voisinage d'une blessure, comme le montre la figure ci-contre. La progression souterraine à partir de la blessure est nettement mise en évidence. En dehors de la zone en court circuit avec le substrat (produits de corrosion), visible

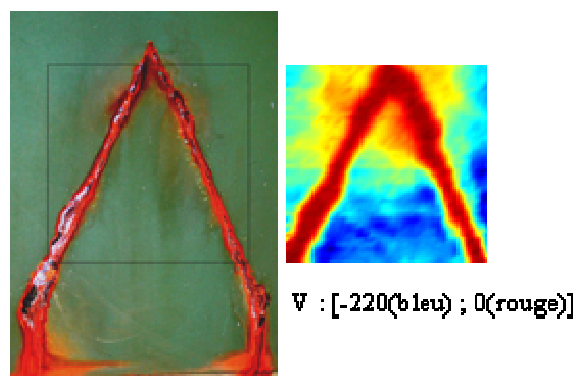


Figure 63 : Photographie et cartographie de V  
Revêtement anticorrosion blessé et vieilli au brouillard salin  
Cartographie 40x40mm

en rouge, la cartographie présente des zones à bas potentiel étendues au voisinage de la blessure, au delà de la zone cloquée visible sur la photographie, en jaune et bleu clair, la zone éloignée de la blessure étant au potentiel le plus élevé (bleu foncé). Les coulures superficielles observées peuvent expliquer une partie de la zone à bas potentiel mais certainement pas l'ensemble : une fragilisation du revêtement dans son volume ou à sa surface inférieure est mise en évidence. Les zones de cloquage se situant autour de la blessure sont également bien visibles comme zones de bas potentiel.

Un autre exemple, sur un autre type d'éprouvette, scarifié à la fraise puis vieilli sur site, est donné Figure 64.

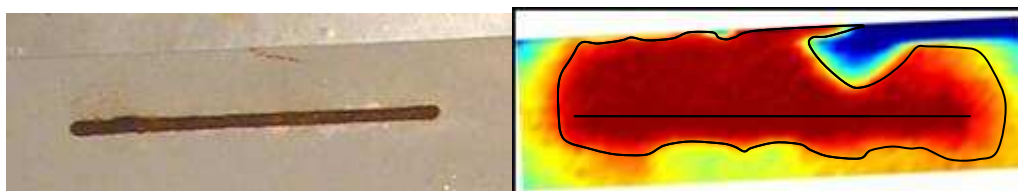


Figure 64 : Photographie et cartographie de potentiel au voisinage d'une blessure

Revêtement anticorrosion blessé et vieilli naturellement. Cartographie 70x20 mm, V : [-180V (bleu); 0V (rouge)]

La scarification apparaît sur la cartographie entourée par une large zone à très faible potentiel, alors qu'en apparence le revêtement n'est pas dégradé. Il est possible que la progression d'une dégradation soit observée, sous forme de décollement de la couche de peinture. Des tests d'adhérence réalisés à l'Institut des Sciences de l'Ingénieur de Toulon et du Var (ISITV) ont montré que la zone observée par mesure du potentiel de surface correspond à une surface de plus faible adhérence du revêtement sur le substrat. Mais des tests par décapage au solvant ont également montré que cette zone ne correspond pas à une zone oxydée du substrat.

### D.5.3 Caractérisation détaillée de divers types de défauts

#### D.5.3.1 Introduction

Les cartographies montrées ci-dessus contiennent une incertitude sur la nature des phénomènes observés : décollements, altération physicochimique en volume, prise d'eau, ou bien diffusion de produits de corrosion ? La thèse de Delphine Koch a eu pour objectif de clarifier la compréhension de cette détection, notamment de vérifier si on mettait effectivement en évidence une mauvaise adhérence entre le substrat et le revêtement.

Des essais ont été menés sur deux plaques revêtues d'un système bicouche, un primaire à base de résines époxydiques et de pigments qui assurent l'inhibition de la corrosion, réticulées avec des résines polyamides, et une couche de finition en polyuréthane réticulé avec un isocyanate aliphatique, l'épaisseur du revêtement étant d'environ 30µm pour la couche primaire et 55µm pour la finition. Avant vieillissement, le revêtement a été scarifié d'un trait de fraise normalisé (1x40mm).

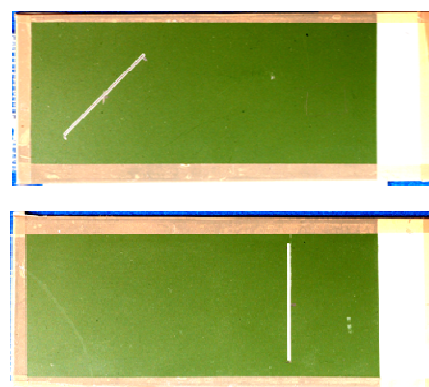


Figure 65 : Photographie des deux éprouvettes

(NB : comme on le voit, la couche de finition ne recouvre pas la partie droite)

Les éprouvettes ont été vieillis artificiellement à l'ETCA (DGA Arcueil) au brouillard salin neutre, avec 3 cycles de vieillissement successifs (V1 : 258h, V2 : V1+168h, V3 : V2+144h), puis,



après rinçage et séchage, chargées à +1000V et cartographiées, des mesures de déclin / retour de potentiel ayant été effectuées aux points singuliers.

### D.5.3.2 Cartographies

L'étude a permis d'identifier différentes zones à faible potentiel sur les cartographies de potentiel qui se développent avec le vieillissement à partir de points critiques, comme les bords de l'éprouvette, les scarifications ou (comme sur la Figure 66) la rupture du revêtement entre couche primaire et finition.

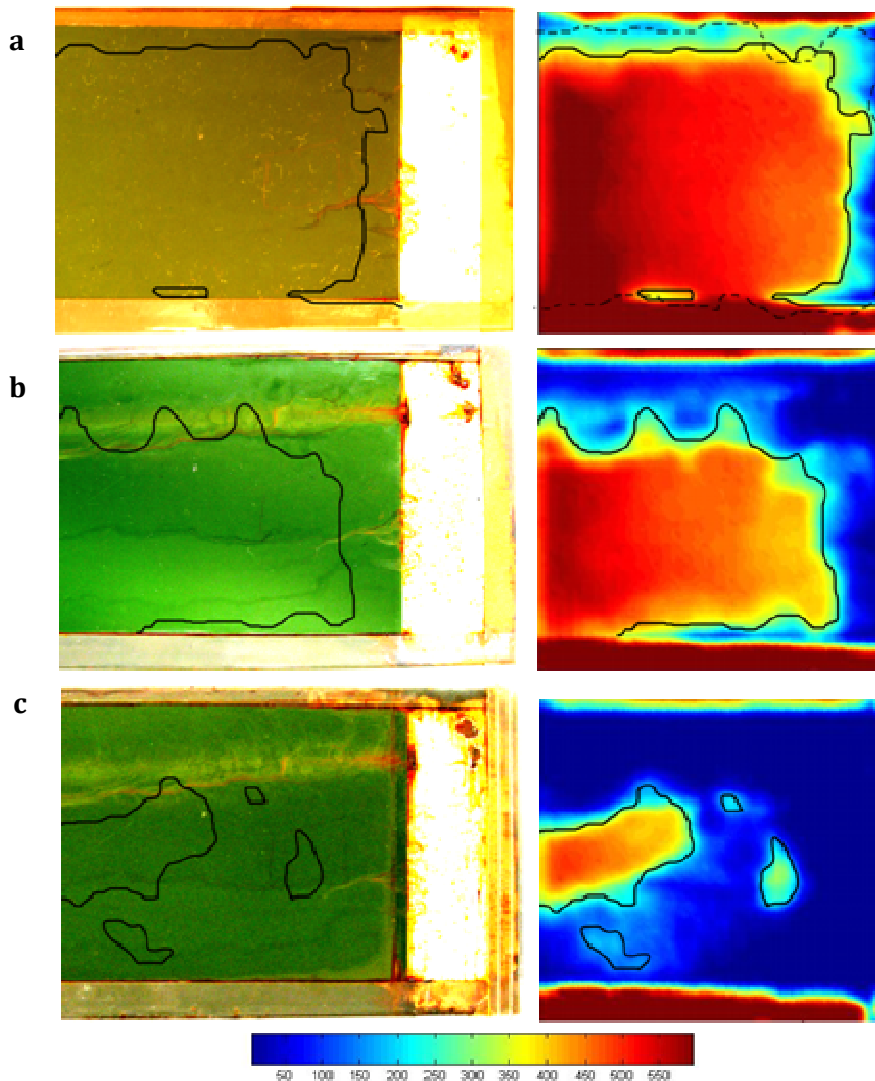


Figure 66 : Photographie et cartographie de la moitié de l'éprouvette 1

a/ 1er vieillissement, b/ 2nd vieillissement, c/ 3e vieillissement

### D.5.3.3 Zones à bas potentiel et cloquage

Nous avons essayé au cours du vieillissement de corrélérer l'apparition de cloques avec les zones à faibles potentiel. Nous avons ainsi identifié sur une des éprouvettes, au cours du vieillissement, 4 défauts bien caractéristiques qui ont été également étudiés par profilométrie.

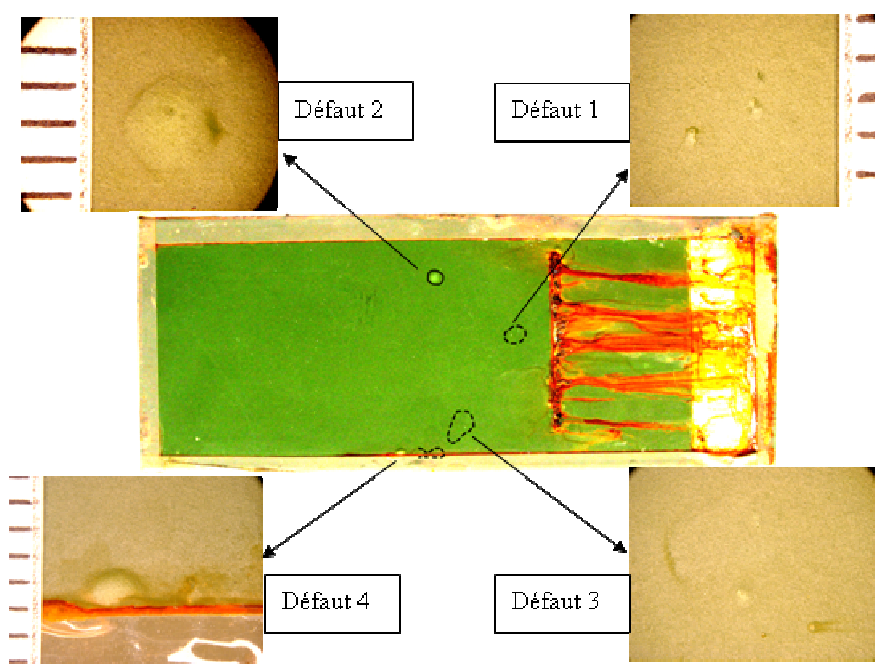


Figure 67 : Défauts apparaissant après un vieillissement prolongé V3

La Figure 68 montre les cartographies de potentiel correspondant à la partie droite de cette éprouvette (sur laquelle la position de ces cloquages a été reportée), pour les vieillissements V1 et V2.<sup>7</sup> Deux de ces défauts (3 et 4) ont été détectés sur la cartographie comme une zone à faible potentiel avant d'apparaître visuellement. Les défauts 1 et 2 apparaissent également comme des zones à faibles potentiel mais, au moins concernant le défaut 2, son apparition ne semble pas corrélée à une zone de ce type préexistante. Par ailleurs la zone à faible potentiel autour d'un défaut est toujours plus grande que le défaut mesuré par profilométrie.

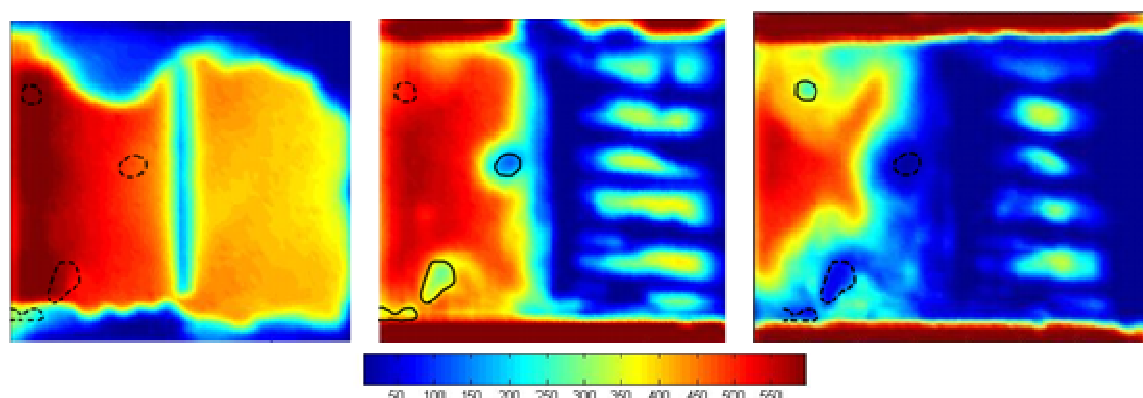


Figure 68 : Cartographies de la zone scarifiée de l'éprouvette2  
avant vieillissement (60x64mm), 1e vieillissement (60x64mm), 2e vieillissement (60x74mm)

<sup>7</sup> La cartographie sur l'éprouvette neuve fait apparaître une zone à bas potentiel, à partir des côtés. Il a été montré que cette zone est en fait réversible (on voit d'ailleurs qu'elle a partiellement disparu sur la 2<sup>ème</sup> cartographie), probablement liée à la présence d'humidité.

### D.5.3.4 Interprétation physique

Les expériences de déclin et retour de potentiel en différents points ont permis de séparer trois types de réponse :

a) une réponse de base, quasi indépendante du vieillissement et du champ, et donnant naissance à un retour de potentiel proportionnel, attribuée à une *réponse dipolaire lente*. Un exemple de l'utilisation de ces mesures de retour de potentiel est donné ci-dessous.

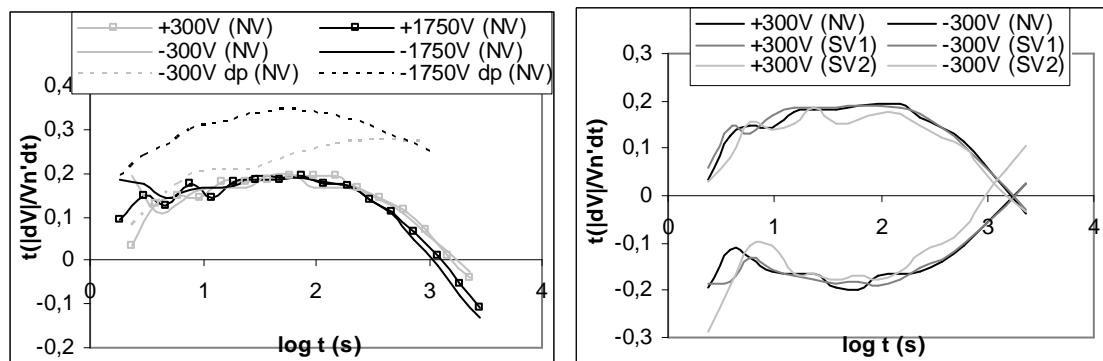


Figure 69 : Retour de potentiel normalisé au créneau de potentiel après déclin de 1800s

- à gauche, sans vieillissement (NV), comparaison déclin / retour pour 2 niveaux de tension  
- à droite, influence du vieillissement (SV1 SV2) sur le RP

b) un phénomène activé par le champ et par le vieillissement, surtout dans les zones présentant un affaiblissement du potentiel, ne donnant pas naissance à un retour de potentiel proportionnel, est attribué à une *conduction*.

Par exemple, on donne ici la réponse de la zone cloquée D1 (voir ci-dessus). Le potentiel est divisé pour normalisation par le potentiel à 6 secondes pour séparer l'influence du phénomène rapide mentionné ci-après.

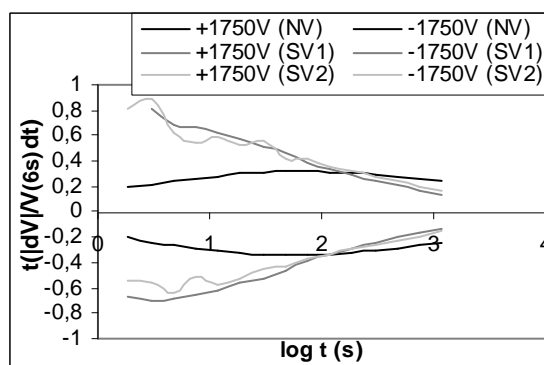


Figure 70 : Déclins de potentiel de la zone du défaut D1 pour différents vieillissements, normalisé à V(6s)

c) une réponse rapide activée par le vieillissement, dans toutes les zones, se traduit par une différence importante entre le potentiel de charge et la première valeur mesurée du potentiel. Elle est particulièrement activée dans les zones de cloquage, et est attribuée à une *réponse dipolaire rapide* (temps caractéristique de l'ordre de la seconde, voire moins). Pour la chiffrer on a considéré la perte de potentiel entre la charge et un temps de 6 secondes (Figure 71).

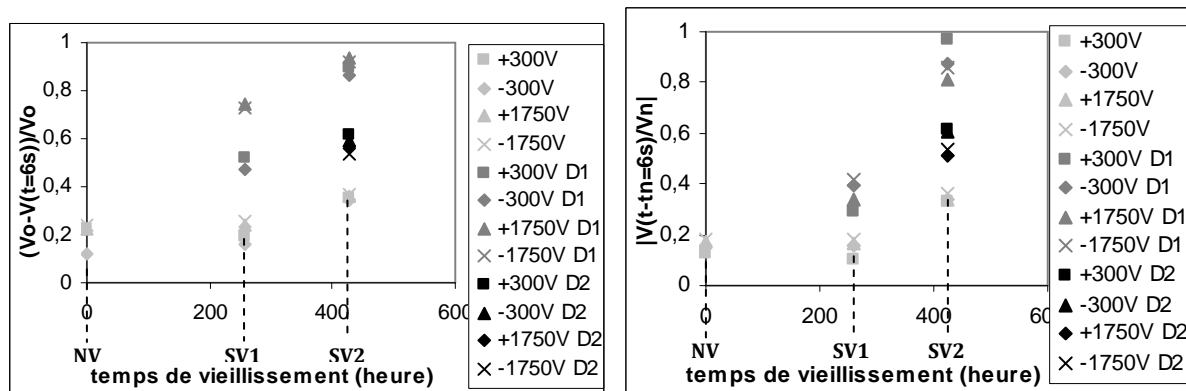


Figure 71 : Perte de potentiel entre la charge et t=6s en fonction du vieillissement et de l'endroit

Ces trois réponses ont été essentiellement corrélées à trois effets différents de la présence d'eau : la modélisation proposée suggère que la fixation d'eau, même sans vieillissement, active une réponse dipolaire lente liée à la relaxation du matériau lui-même, en en augmentant l'ampleur en termes de moment dipolaire. Ce phénomène n'est donc pas un bon indicateur du vieillissement. En revanche, les deux autres phénomènes, l'apparition d'une conduction, et l'apparition d'une réponse rapide, semblent être liées au vieillissement. Le second semble être plus corrélé à l'apparition de cloquage, et donc plus intéressant.

Cette modélisation reste à confirmer. Cependant, il est déjà démontré que la précision des structures visibles sur la cartographie électrostatique en fait un outil extrêmement utile pour la compréhension du comportement au vieillissement d'un revêtement anticorrosion.

## **D.6 Conclusions et perspectives**

### **D.6.1 Forces et faiblesses de ces travaux**

Un bilan de ces investigations sur divers matériaux, qui peut ressembler à un inventaire à la Prévert (et encore, tout n'a pas été mentionné), montre un certain nombre de lignes directrices intéressantes quant à la technique de potentiel de surface, accompagnée d'un traitement sérieux des données.

- 1) Il est possible, en combinant des outils multiples accompagnant cette technique (déclin, retour de potentiel, cartographies, différents modes de charge, différentes métallisations, etc.) d'obtenir une grande quantité d'informations sur les matériaux
- 2) La technique est simple à mettre en œuvre et très sensible, relativement protégée des parasites, et donne des résultats reproductibles
- 3) Les mécanismes à l'œuvre dans la réponse d'un matériau sont en général superposés, et il importe de définir des procédures pour essayer de les séparer au moins en grandes catégories (polarisation de type dipolaire, conduction, injection de charge)

Le tout forme un travail de recherches limité mais reconnu dans une certaine mesure par la communauté en électrostatique (ou des matériaux diélectriques en génie électrique), car il a probablement le mérite d'une certaine originalité. Un certain nombre de faiblesses ne nous ont cependant pas échappé tout au long de ce parcours, notamment :

- 1) Le traitement du signal peut être accompagné de simulations informatiques et/ou d'un traitement mathématique plus évolué. On pourrait par exemple envisager, en principe, une déconvolution séparant mathématiquement les différentes réponses.
- 2) Beaucoup de ces essais ont été faits dans le cadre d'études isolées, ou sur des contrats industriels de courte durée, et n'ont pas permis de corréler les résultats obtenus par notre technique avec des mesures par d'autres techniques, notamment de mesures de charge d'espace. Diverses tentatives ont pourtant été faites, à travers le GDR SEEDS, mais les résultats n'ont pour l'instant pas été très concluants. Nous y reviendrons.
- 3) Nous contrôlons souvent mal dans nos essais divers paramètres pourtant importants pour aller plus loin dans la modélisation : manque d'information sur la structure physico-chimique du matériau, manque de contrôle de l'humidité, travail dans l'air ambiant, etc...

Nous avons la perspective à moyen terme de surmonter ces difficultés, au moins en partie, grâce à une série de collaborations qui sont en cours.

## D.6.2 Perspectives

### D.6.2.1 Collaborations avec le CNES et l'ONERA pour l'étude des mécanismes de conduction dans des isolants utilisés comme revêtements dans le domaine spatial

Nous sommes engagés depuis quelques années dans une collaboration informelle avec le CNES et le DESP (département de l'environnement spatial) de l'ONERA, qui a pris une forme contractuelle depuis 2009, pour l'interprétation des données de potentiel de surface effectuées sur l'expérience SIRENE. Il s'agit d'un dispositif permettant le contrôle de faisceaux d'électrons pour reproduire les spectres énergétiques (entre 20 et 400 keV) auxquels sont soumis des satellites à diverses orbites, notamment géostationnaires. Ces bombardements de particules chargées sont en effet responsables de la charge différentielle des différents isolants qui



Figure 72 : B. Dirassen et le dispositif SIRENE à l'ONERA  
(<http://www.onera.fr/desp-en/technical-resources/sirene.php>)

protègent les satellites, à la fois pour assurer leur isolation thermique (revêtements notamment de Téflon et Kapton), ou, par exemple, la protection de leurs panneaux solaires (verres). SIRENE est une des solutions existantes de simulation au sol. Elle met en œuvre des mesures de potentiel de surface pour évaluer les potentiels de charge dans différentes configurations de faisceau. Il s'agit ici d'évaluer l'effet combiné de charge (piégeage d'une charge nette dans le matériau, et parfois constitution d'une charge positive en surface par émission secondaire) et de conductivité induite (production de paires électrons-trous sur le trajet du faisceau) des faisceaux d'électrons, en fonction du matériau.

En effet, les deux jouent généralement dans des sens opposés sur le potentiel induit. Par ailleurs, une dynamique sur le long terme est à prendre en compte, car, comme on l'a vu §B.3.6, la constitution de la conductivité induite (*RIC*) peut ne pas être instantanée, et surtout sa présence persiste un temps variable après l'arrêt de l'activation, en décroissant lentement (*DRIC*).

Nous avons été sollicités pour améliorer la modélisation et l'interprétation des phénomènes physiques intervenant dans les observations. Cette collaboration a donné lieu à une présentation commune à une conférence en 2006, puis s'est aujourd'hui formalisée sous forme d'une contractualisation CNES-Supélec, et du co-encadrement avec Thierry Paulmier du DESP-ONERA de la thèse de Rachel Hanna depuis octobre 2009. Une collaboration avec le CNES et l'ONERA est donc initiée pour la période 2010 – 2012.

Cette collaboration doit permettre, du point de vue de mes recherches, de développer des modélisations des phénomènes de conduction induits par l'irradiation, en s'appuyant sur l'expertise du déclin de potentiel acquise à Supélec et sur les équipements performants du DESP-ONERA, uniques en Europe, de charge des matériaux. La corrélation d'expériences réalisées avec

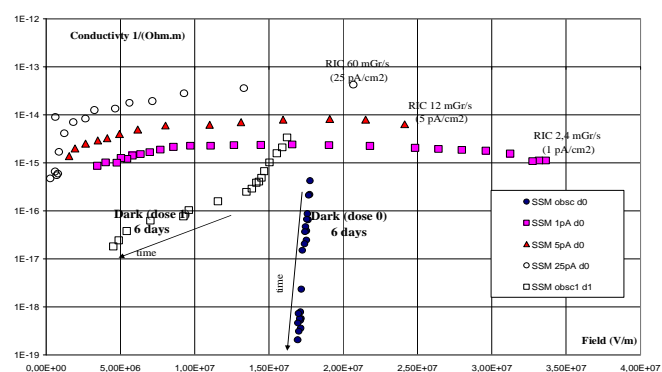


Figure 73 : Conductivité équivalente sur des plaques de Teflon® SSM irradiées [78]

ces équipements et d'expériences plus modestes au Département Energie devrait permettre de compléter la modélisation. Les matériaux concernés sont essentiellement des films de Téflon® FEP et de Kapton® (polyimide), d'épaisseur 50µm et 127µm.

#### ***D.6.2.2 Collaboration avec le SPMS (Ecole Centrale) pour la caractérisation électrique de nanocomposites ferroélectriques innovants***

Dans le cadre du rapprochement entre Supélec et l'Ecole Centrale de Paris, un projet de thèse a été élaboré en commun avec Jean-Michel Kiat du laboratoire SPMS (Structures, Propriétés et Modélisation des Solides). Un financement sur 3 ans a été obtenu de l'Institut Carnot C3S, et M. Hoang-Nam Nguyen a commencé ce travail de thèse en mai 2010.

Ce projet s'inscrit dans la perspective du stockage de l'énergie dans de nouvelles générations de supercondensateurs, notamment pour application à la voiture électrique. Aujourd'hui de tels développements industriels sont irréalisables faute de matériaux suffisamment performants, mais leur mise au point semble envisageable à moyen terme, en s'appuyant sur les développements récents dans le domaine des ferroélectriques à très haute permittivité. Pour réaliser de tels matériaux, l'utilisation de composites à base de titanate de baryum est classique, mais leur combinaison avec des éléments céramiques ou métalliques sous forme de composites nanostructurés est innovante et peut conduire à une percée technologique.

Le laboratoire SPMS de l'Ecole Centrale possède une compétence pour l'élaboration de tels nanocomposites. Un des paramètres à maîtriser pour l'application de ces matériaux au stockage de l'énergie est cependant leur tenue à de forts champs électriques (de l'ordre de 100 kV. mm<sup>-1</sup>). La collaboration avec le Département Energie de Supélec doit permettre leur caractérisation électrique et la corrélation de ces propriétés avec la structure, en utilisant les mesures de potentiel de surface pour déterminer les champs critiques auxquels apparaissent des phénomènes d'injection de charge, voire de claquage. Cette collaboration peut permettre de surmonter un des problèmes que nous avons évoqué ci-dessus : le manque de maîtrise du matériau, qui rend difficile de relier des modélisations avec la structure réelle.

Nous sommes également partenaires d'un projet qui a été déposé en mars 2010 par le SPMS à l'ANR, dans le cadre du programme « stockage de l'énergie », avec comme partenaires une start-up (NANOE) et le Centre des Matériaux Armines – Mines Paris Tech. L'objectif de ce projet est d'aller jusqu'à la mise au point d'un prototype nouveau de supercondensateur.

#### ***D.6.2.3 Comparaisons avec d'autres techniques***

Ce point est très important pour nous, car les techniques électrostatiques utilisées à Supélec ne sont qu'un moyen d'investigation parmi d'autres des propriétés électriques des matériaux.

Les utilisateurs d'autres techniques, notamment des mesures de charges d'espace, telles la méthode de l'onde de pression (LIPP), la technique électroacoustique pulsée (PEA), la méthode de l'onde thermique (MOT – TSM) ou encore la FLIMM, sont généralement arrivés à la même conclusion, malgré leur attachement particulier à une méthode certainement meilleure que celles de leurs collègues...

Cette situation a permis de constituer un réseau, regroupant dans le cadre du groupe Matériaux Diélectriques des GDR ME<sup>2</sup>MS, puis SEEDS, des équipes de laboratoires comme l'IES de Montpellier (Serge Agnel, Jérôme Castellon, Petru Notingher), le LAPLACE de Toulouse (notamment Gilbert Teyssèdre, Séverine Le Roy, et David Malec), l'Ecole Centrale de Lyon (Thomas Aka, Daniel Tréheux, Christelle Guerret), l'Université de Reims (Omar Jbara, Sébastien Rondeau), G2ELAB de Grenoble (Alain Sylvestre, Olivier Gallot-Lavallée, Jean-Louis Augé), l'Université de Pau (Anca Petre) et l'ESPCI (Stéphane Holé). Ce réseau regroupe donc de multiples techniques d'analyse, et nous avons essayé depuis 2003 de travailler en commun sur les mêmes matériaux : PET puis Alumines.

Les résultats de cette collaboration, s'ils ont été très positifs en termes de contacts scientifiques, et de constitution d'un réseau, sont cependant encore modestes du point de vue des comparaisons et des corrélations entre techniques, si on en juge par le nombre de publications



produites. Certaines difficultés objectives font que cette corrélation est complexe. Nous avons constaté lors du GDR ME<sup>2</sup>MS, que, même en travaillant sur le même matériau, les conditions expérimentales étaient différentes d'une équipe à l'autre (épaisseur des échantillons, procédure, température, tensions de polarisation, métallisation) et la comparaison difficile. Quelques résultats ont cependant été publiés [79].

Pour éviter cet écueil, nous avons dans le cadre de l'équipe « Matériaux isolants » du GDR SEEDS qui a pris le relais, réalisé la caractérisation d'alumines par mesures de potentiel dans un contexte le plus proche possible de la configuration expérimentale utilisée à l'IES de Montpellier avec la Méthode de l'Onde Thermique (même échantillons, même métallisation). Une première présentation générale des résultats a été effectuée à une conférence [80], et en s'appuyant sur la complémentarité entre les techniques, notamment d'une part de mesures de charge d'espace, et d'autre part de TSC et de mesures de potentiel, nous avons construit un modèle de conduction dans les alumines polycristallines étudiées fondé sur la polarisation interfaciale [81]. Ce travail a montré que ce type de comportement, faisant intervenir l'accumulation locale de charge bipolaire dans le matériau, n'était pas détectable par les seules techniques de mesure de charge d'espace, mais pouvait l'être par une combinaison de techniques.

Ce phénomène s'observe souvent. A titre d'exemple, nous pouvons évoquer les résultats d'une tentative récente faite par des collègues chinois en collaboration avec l'université de Southampton pour corréler les résultats de déclin de potentiel à une technique de mesure de charge d'espace, la PEA [77].

Le déclin de potentiel observé (Figure 74 en haut) sur des films de polyéthylène basse densité présente un *cross-over*, et donc incite à modéliser l'évolution du potentiel par un modèle d'injection progressive de la charge vers la masse. Or les mesures PEA, si elles montrent effectivement une charge d'espace interne qui diminue progressivement avec le temps (cercle rouge), montrent aussi que la distribution évolue très peu dans l'espace<sup>8</sup>. Cela laisse envisager qu'après une phase initiale d'injection pendant les premières minutes, un processus de polarisation ou d'écrantage de la charge par conduction lui succède. Cela confirme la nécessité de combiner tous les processus dans les modélisations (d'autant qu'une injection à la contre électrode est aussi visible sur d'autres courbes), mais aussi que la confrontation de différentes techniques n'est pas évidente. Par contre, leur complémentarité est très intéressante.

Ces premiers résultats et ces exemples montrent que les collaborations qui sont en cours dans le cadre du groupe GDR SEEDS ont produit une « force de frappe » expérimentale et théorique, qui nous donne un atout pour développer dans les années qui viennent, une recherche de qualité sur les phénomènes de conduction dans les matériaux, qui sont encore mal compris.

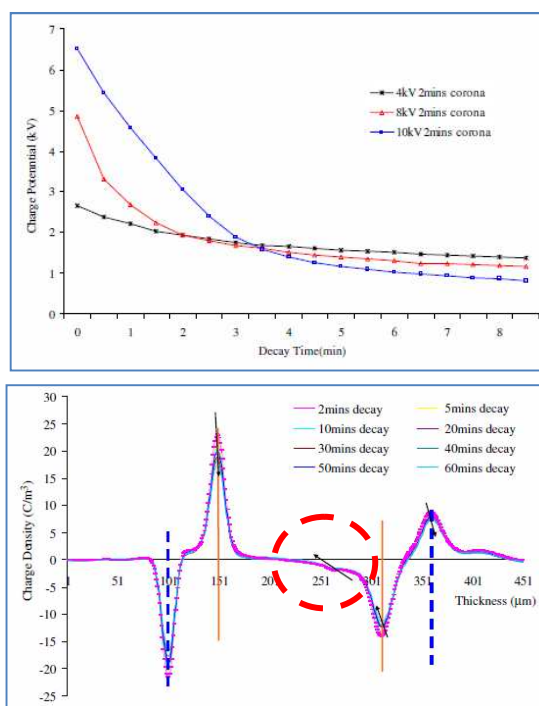


Figure 74 : Déclin de potentiel et mesures PEA [77]

Films LDPE 50µm – la mesure PEA est effectuée après charge à 8kV

<sup>8</sup> Même si les auteurs ont dessiné une flèche pour faire percevoir un mouvement dont la réalité est discutable... et qui montre surtout leur idée *a priori* de ce qui devrait être mesuré.







## E. L'animation d'un réseau de recherche en Electrostatique, et quelques réflexions sur cette discipline et son histoire

*'Static', better described as 'contact electrification', is of much more frequent occurrence than is commonly supposed (...) Part of our present ignorance of the subject is the indirect result of inadequate teaching of electrostatics a generation ago (as we now realize), together with the almost complete neglect of contact electrification by the universities.*

P.S.H. Henry "Static" in industry, *Phys. Educ.* 3 3-9, 1968

*Faraday (...) n'était qu'un simple ouvrier relieur, et le hasard seul l'a conduit dans les laboratoires. S'il se révélait ainsi dans notre Palais de la Découverte une seule grande vocation de même sorte, notre effort à tous serait payé plus qu'au centuple*

Jean Perrin, 1937

*C'est pas que ça ne m'intéresse pas, mais, euh... vous n'auriez pas un truc plus facile ?*

*De toutes façons l'an prochain je veux faire de l'audit ou de la finance, alors...*

L'étudiant de Supélec (1895 ?, 1896 ?, ... 2007, 2008, 2009)

### E.1 Introduction

La recherche en Electrostatique, cela existe-t-il ? En France, la consultation de l'annuaire du CNRS montre qu'il n'existe plus de laboratoire comprenant ce mot dans son sigle, le *Laboratoire d'Electrostatique et de Matériaux Diélectriques* de Grenoble ayant perdu son intitulé avec la création de G2ELAB il y a quelques années. Le thème est-il définitivement réduit à l'invisibilité scientifique ? Et à l'échelle internationale ? Une recherche de plus d'une heure sur internet ne m'a permis de trouver qu'un seul véritable laboratoire de recherche comprenant le mot *electrostatics* dans son intitulé : l'*Electrostatics and Surface Physics Laboratory* du *Kennedy Space Center* de la NASA, qui compte une dizaine de chercheurs permanents. D'autres laboratoires ont existé, et semble-t-il ont disparu ou fondu, comme l'*Applied Electrostatics Research Laboratory* de l'Université de l'Illinois. D'autres se sont réduits à des réseaux de chercheurs travaillant dans des laboratoires distincts, comme l'*Applied Electrostatics Research Centre* de l'Université de Western Ontario, ou à des centres d'expertise en direction de l'industrie, comme le *Wolfson Electrostatic Group* de l'Université de Southampton.

A une échelle plus modeste, au niveau des intitulés des groupes de recherche, le mot-clé réapparaît, mais l'impression qui peut se dégager est qu'il n'y a que deux domaines où des groupes de chercheurs n'ont pas honte de définir leur domaine comme relevant de l'Electrostatique : le spatial et la biologie moléculaire (équipes travaillant notamment sur la modélisation du repliement des protéines). En ce qui concerne les matériaux, ou le génie électrique, la thématique disparaît souvent complètement.

La visibilité de l'électrostatique se réduit donc souvent à trois domaines : l'enseignement, les démonstrations grand public, et le domaine des applications du risque électrostatique, avec un profil plus professionnel ou technologique que scientifique. Pourtant, comme nous l'avons signalé en introduction, les problématiques de l'électrostatique se retrouvent au cœur de nombreuses questions de recherche aujourd'hui. Faut-il donc penser que, même si l'on retrouve de l'électrostatique partout, par exemple dans les nanotechnologies, les biotechnologies, la dépollution, pour citer des domaines à la mode, cette électrostatique ne pose pas en elle-même

de problème de recherche, qu'elle est en quelque sorte une science à posséder ou une technique à maîtriser mais qu'elle n'est pas *l'objet* étudié ?

Cette question n'appelle pas une réponse identique dans tous les cas. Bien entendu, si l'on considère que la discipline se résume aux lois de base de l'Electrostatique, le domaine de recherche est un peu verrouillé... Mais nous pouvons prendre le problème à l'opposé, c'est-à-dire en considérant les réseaux interdisciplinaires qui se sont constitués autour de l'électrostatique. Nous allons voir que leur formation et leur dynamisme correspond à l'origine à des besoins industriels et sociaux, qui ne se limitent pas à de la prestation de service pour d'autres champs de recherche. Il y a en effet une cohérence profonde dans toutes les problématiques où l'électrostatique intervient : les modélisations de matériaux que nous avons présentées en décrivant les recherches menées à Supélec, l'instrumentation, les techniques à mettre en œuvre, ont une cohérence qui appartient bien au champ de recherche de « l'électrostatique ». La science des matériaux, ou par exemple la communauté des « polyméristes » font aujourd'hui référence à autre chose, plus axé sur la chimie (pour ce qui est de l'élaboration). Les nanotechnologies ont également un domaine bien spécifique. En revanche, ce qui est piézoélectricité, capteur ou actionneur MEMS, se rattache le plus souvent à l'électrostatique par sa nature et sa fonction même. Le génie électrique désigne encore une autre communauté, où on ne s'intéresse au diélectrique que dans la mesure où il peut vieillir et claquer.

Mais peut-être vaut-il mieux que l'électrostatique reste une passerelle interdisciplinaire, plutôt que d'être une discipline de recherche ? Une chose est sûre en tous cas : l'électrostatique, même sans reconnaissance institutionnelle, sera toujours là, sans compter que, comme on va le voir, trop longtemps négligée, elle sait attirer avec une certaine violence l'attention des autorités...

Nous allons également aborder des questions d'histoire, et nous allons expliquer quel lien nous faisons entre ces questions et l'animation d'un réseau de recherches en électrostatique, et également la question de la relation au grand public, pour lequel au contraire, l'électrostatique est facile à identifier, et garde une forte image.

## ***E.2 Animation d'un réseau de recherches en Electrostatique***

### **E.2.1 La naissance de nouvelles institutions et réseaux internationaux en Electrostatique (1967-1977)**

La recherche internationale moderne en électrostatique ne s'est donc pas structurée autour de laboratoires, mais avant tout autour de réseaux, de sociétés. Comme nous l'avons souligné en introduction, c'est vers 1970 que la plupart de ces grandes sociétés scientifiques internationales se sont fondées en Electrostatique. Il est frappant de noter l'importance de cette décennie pour la discipline :

- 1967 : fondation du *Static Electrification Group* de l'*Institute of Physics* (UK), qui organise depuis tous les 4 ans la conférence *Electrostatics*, au Royaume-Uni. La prochaine aura lieu à l'université de Bangor en 2011.
- Mai 1970 : *First International Conference on Electrostatics* (ICE) organisée par l'*European Working Party "Static Electricity in Industry"*, de l'EFCE (*European Federation of Chemical Engineering*). Depuis, la conférence ICE a lieu tous les 4 ans, en alternance avec la précédente, et la dernière (XI<sup>ème</sup>) a été organisée cette année à Valencia par Pedro Llovera.
- Août 1970 : fondation de l'*Electrostatic Society of America* (basée à Rochester) par A.D. Moore.
- Février 1975 : premier numéro du *Journal of Electrostatics*, fondé par J.P Gibbings
- Octobre 1977 : l'*Institute of Electrostatics Japan* tient sa première conférence à Tokyo

Les causes profondes de ce renouveau d'intérêt pour l'électrostatique ont été à mon avis liées à deux facteurs :

- le développement dans les années 1960 de nouveaux dispositifs électrostatiques « actifs », notamment les premières photocopieuses, et les premiers microphones à électrets polymériques produits en grande série (grâce au développement de films PTFE).
- la prise de conscience des implications de la prolifération des matériaux isolants (solides, liquides ou granulaires) dans les domaines d'activité du monde moderne, sur la discipline.

On sait que les problèmes d'électrification statique se rencontrent aujourd'hui partout, des silos à grain de l'industrie agroalimentaire aux calculateurs de déclenchement d'airbags, en passant par les revêtements des satellites. Cependant, il semble que la prise de conscience de l'importance de ce risque électrostatique ait été assez brutale. En 1967, P.S.H. Henry, préfaçant le recueil de la première conférence du *Static Electrification Group*, constatait déjà, à la suite d'une série d'accidents industriels, « *industry has been forced to study « static » by its nuisance value* ».

Le 12 décembre 1969, le *Marpessa*, un superpétrolier de 200000 tonnes, qui accomplissait son deuxième voyage, subit une énorme explosion au large de Dakar, et coula deux jours plus tard. Dans les deux semaines qui suivirent, le *Mactra* et le *Kong Haakon VII*, deux pétroliers géants de la même génération nouvellement mis en service, sautèrent à leur tour. Les enquêteurs finirent par attribuer ces trois accidents (sur des pétroliers naviguant « à vide ») aux méthodes utilisées pour le nettoyage des cuves : cette opération était réalisée par un lavage avec des canons à eau puissants, et le choc des gouttelettes à grande vitesse sur la tôle produisait une quantité de charge statique génératrice d'étincelles capables d'enflammer le mélange. Il est intéressant de noter que 5 ans plus tard, le principal sujet traité par le premier numéro du *Journal of Electrostatics* était le phénomène d'électrisation impliqué dans ces catastrophes.

A partir de cette prise de conscience, la structuration d'un champ de recherche nommé « Electrostatique » a nécessité bien des efforts. En témoignent pour cette période fondatrice les statuts de l'*Electrostatic Society of America* :

*"The Society shall serve to unify and integrate the varied, diversified, and often isolated areas of electrostatic researches and applications (...), it shall promote the proper growth and recognition of electrostatics in suitable ways, such as to secure the cooperation of the schools so that teaching of electrostatics may not be ignored (...); in general, it shall serve the cause of electrostatics in all possible ways"...* (art.2, constitution, ESA)

Ce texte à lui seul montre les deux problèmes à surmonter : la dispersion des recherches dans le domaine et le manque de visibilité de la discipline dans l'enseignement scolaire (en dehors des lois de base), même si l'électrostatique est toujours restée un moyen « extrascolaire » de vulgarisation de la science (voir §E.3.4).

## E.2.2 La Société Française d'Electrostatique

En France, le champ de recherches de l'Electrostatique ne s'est pas vraiment structuré au même niveau pendant cette période qu'en Angleterre, aux USA, ou au Japon.

Le premier laboratoire du CNRS dédié en partie à l'Electrostatique avait été créé dans l'immédiat après-guerre par Frédéric Joliot et Louis Néel : le *Laboratoire d'Electrostatique et de Physique du Métal* (LEPM), installé à Grenoble. Les activités d'électrostatique étaient au départ centrées sur la fabrication de machines électrostatiques, sur lesquelles Noel Félici et Louis Néel avaient travaillé pendant l'occupation, avec comme préoccupation la construction d'accélérateurs de particules. (on voit l'importance dans cette période des années 1930 et 1940, du lien entre la physique atomique et l'électrostatique, déjà soulignée sur l'origine du laboratoire de physique des Décharges, et qui en fait remonte à Marie Curie, en passant par Joliot, nous y reviendrons plus loin). Ensuite, une partie importante de ces activités (regroupées depuis le début des années 70 dans le LEMD) a été l'étude des liquides diélectriques.

Mais ce n'est qu'en 1997 que Gérard Touchard, organisant à Poitiers la 8<sup>th</sup> *International Conference on Electrostatics*, a proposé la création de la Société Française d'Electrostatique. Le *Laboratoire d'Etudes Aérodynamiques* de Poitiers avait de son côté depuis longtemps une recherche active dans le domaine de l'électrofluidodynamique, et un large réseau de relations dans le domaine, notamment concernant le risque électrostatique.

Depuis lors, l'activité principale de la SFE a été d'organiser 6 conférences, 2 à Poitiers, une à Toulouse (organisée par l'ex-LGET, aujourd'hui équipe du LAPLACE), une à Grenoble (organisée par l'ex-LEMD, aujourd'hui équipe de G2ELAB), une à Montpellier (organisée par le Laboratoire d'Electrotechnique de Montpellier, aujourd'hui équipe de l'IES) et la dernière a eu lieu au Palais de la Découverte et à Supélec, organisée par le Département Energie.

### E.2.3 La 6<sup>ème</sup> conférence SFE

Nous avons cherché à donner un rayonnement particulier à cette manifestation, qui se déroule habituellement sur 2 jours, en l'organisant sur 5 demi-journées, et en contactant le Palais de la Découverte, qui a bien voulu nous accueillir pour un premier après-midi assez différent de l'habituel, puisque nous l'avons dédié à l'histoire de l'Electrostatique et à des présentations voulues généralistes sur l'état de la recherche dans la discipline, ainsi qu'à une de ces démonstrations d'électrostatique qui ont fait la renommée du Palais de la découverte.



Figure 75 : Conférence SFE, repos bien mérité...

Photo P.Dessante

Un point encourageant a été la reconnaissance qu'a constitué la proposition que m'a fait Reuben Hackam d'être éditeur associé du premier numéro spécial de la revue *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation* sur le thème *Electrostatics*. Ce numéro spécial, publié en juin 2009, comprend 25 articles sur la thématique.

Si on fait le bilan, les actions de la SFE sont certes en retrait par rapport à ce qui existe ailleurs, mais elle a le mérite d'exister. Et au-delà de la SFE, le problème de fond semble être la visibilité propre du domaine en France.

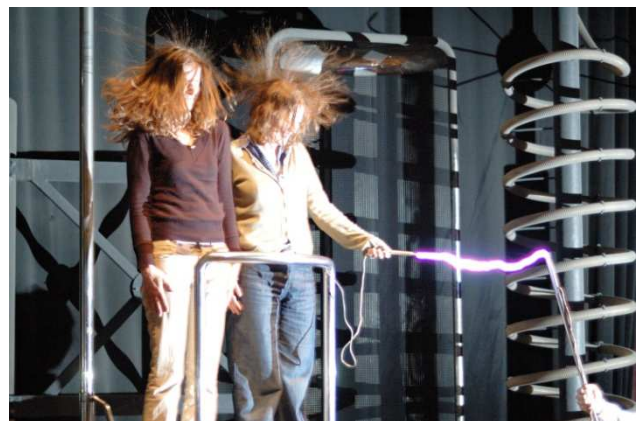


Figure 76 : Persécution électrostatique de jeunes scientifiques

SFE2008, démonstration au Palais de la Découverte

Photo P.Dessante

Par ailleurs, la troisième journée de la conférence, portant sur les applications des plasmas froids, était co-organisée avec mon collègue Emmanuel Odic et le Professeur Mizuno de Toyohashi University.

Plus de 100 participants ont assisté à la conférence, venus de 14 pays, une majorité francophones, mais pas seulement, de nombreux collègues japonais ayant fait le déplacement.

## E.2.4 Montrer la cohérence et la vitalité d'un champ de recherches

L'éclatement des recherches en électrostatique reste donc une réalité, notamment en France, ce qui est logique vu la multiplicité de domaines industriels et économiques considérés. Un certain nombre d'idées générales, de techniques communes de mesure, existent pour aborder ces phénomènes, mais elles sont dispersées, et l'interprétation de leurs résultats, comme j'ai essayé de le montrer, souffre souvent de l'éclatement de ce champ en multiples domaines séparés. Par exemple, les chercheurs qui utilisent et développent depuis les années 1980 les techniques de mesure de charge d'espace ne revendiquent généralement pas cette appellation « électrostatique ». Pourtant, elles en sont au premier chef, car elles sont la plupart du temps incapables de mesurer des évolutions rapides de la charge d'espace.

Il y a cependant beaucoup de physique commune à ces recherches, et il est logique de penser qu'une certaine cohérence existe, que l'on gagnerait à renforcer les réseaux sur la thématique. Comment la délimiter ? Le lien qui peut fédérer toutes ces recherches est relativement simple, il s'agit de contextes dans lequel les influences liées à la charge et au champ électrique dominent toutes les autres forces (champ magnétique, gravitation...). Les équations de base sont donc réduites à quelques-unes : loi de Poisson, conservation de charge... et l'essentiel de la recherche porte sur le transfert et le transport de la charge dans différents milieux.

Une tentative de promouvoir cette idée en faisant une synthèse relativement accessible au non-spécialiste, est donnée par la publication commune que j'ai rédigée avec Gérard Touchard [6] et qui est jointe en annexe.

## E.3 Travaux d'histoire des sciences

### E.3.1 Introduction

En 1997, à l'occasion du centenaire de ses premières découvertes, j'ai été sollicité comme conseiller à la reconstitution de l'expérience de Marie Curie par Soraya Boudia, historienne des sciences. Cette reconstitution est présentée dans un film, *l'Expérience retrouvée* [82].

Quelques années plus tard, j'ai proposé, pour une présentation à la Société Française d'Electrostatique, de reprendre ce travail, et, avec l'aide de Soraya Boudia, je me suis plongé à mon tour dans les carnets d'expérience de Marie et Pierre Curie, qui permettent de suivre au jour le jour la progression des chercheurs qui va aboutir à la découverte du polonium, puis du radium. Ce travail d'historien des sciences, mené d'abord en marge de mon travail de recherches, a suscité un certain intérêt dans la communauté quand il a été présenté en 2004 à Poitiers, et je l'ai continué ensuite, en restant dans le champ des relations entre électrostatique et physique atomique.

Quels sont les liens entre ces travaux d'histoire des sciences et l'animation de la communauté de recherche sur l'électrostatique ? La réponse à cette question m'a été apportée par l'écho qu'ont suscité les présentations que j'ai fait, à Poitiers en 2004, au Palais de la Découverte en 2008 et à Valencia en 2009 : dans une période de spécialisation à outrance, présenter des travaux d'histoire des sciences peut permettre de montrer des lignes de force qui subsistent sur le long terme, et de contribuer à la constitution intellectuelle d'un véritable champ de recherche en électrostatique.

L'ignorance de nombreux chercheurs concernant l'histoire de leur propre discipline<sup>9</sup> et les relations qu'elle a pu entretenir avec d'autres dans le passé est en effet un véritable problème,

---

<sup>9</sup>Une expérience renouvelée à plusieurs reprises, parmi les collègues de Supélec ou du CNRS, que je tente avec mon lecteur : « qui a *inventé* l'électricité, c'est-à-dire l'a identifié en tant que domaine scientifique, et lui a donné son nom ? ». (réponse page suivante)

qui a probablement des implications aussi sur la qualité de la recherche. Un besoin est ressenti par la communauté, et si l'organisation d'une session d'histoire dans les conférences, comme nous l'avons introduite à la SFE, n'est pour le moment pas fréquente dans la discipline, l'idée va peut-être se répandre, car cette expérience a été renouvelée avec succès cette année par Pedro Llovera pour la *XI<sup>th</sup> International Conference on Electrostatics*.<sup>10</sup>

### E.3.2 Les techniques électrostatiques, au cœur de l'histoire des premières années de recherches sur la radioactivité (de Pierre et Jacques à Marie Curie)

La découverte de la piézoélectricité par Jacques et Pierre Curie en 1880 a été une étape importante, non seulement dans l'histoire de l'électrostatique, mais aussi dans la compréhension de la structure de la matière.

Ces charges électriques, qui pouvaient se dégager d'une matière au départ électriquement neutre, vont s'avérer un constituant fondamental de la matière, et un révélateur de ses symétries. Le quartz piézoélectrique, taillé convenablement, devint grâce au talent des deux frères un générateur précis et fiable de quantités d'électricité très faibles, et fournit à Marie Curie, couplé à l'électromètre de Kelvin, un moyen extrêmement sensible de mesurer les rayons uraniques sur lesquels elle commença à travailler en 1897.

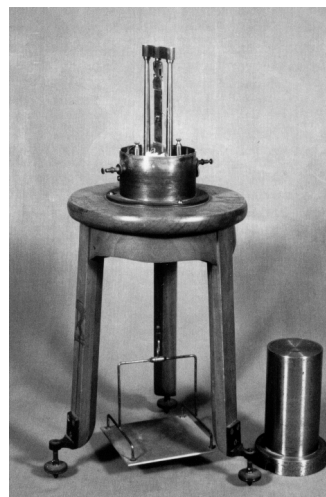


Figure 77 : Générateur de J.Curie à quartz piézoélectrique (photo S.B.-B.V.- ESPCI)

Nous avons détaillé, dans quelques publications, dont une est jointe à ce mémoire [83], comment ces techniques électrostatiques ont eu une influence fondamentale sur le travail de Marie Curie et celui de son laboratoire, jusque dans les années 1930. La reconstitution de l'expérience de Marie Curie, et l'analyse des carnets de laboratoire, ont montré à quel point ces techniques étaient performantes et sensibles, même comparées à des techniques de laboratoire actuelles.

Ensuite, le champ de recherches de la radioactivité (centré sur l'emploi de radioéléments) fut petit-à-petit éclipsé par celui de la physique atomique, faisant de plus en plus souvent appel à des accélérateurs de particules. Mais pour les premiers accélérateurs de particules aussi, l'électrostatique allait longtemps jouer un rôle de premier plan.

---

<sup>10</sup>Réponse à la question précédente : il s'agit de *William Gilbert (1544-1603)*. Médecin personnel de la reine Elisabeth d'Angleterre, c'est lui qui a, pour la première fois, mené une étude systématique des forces attractives et répulsives produites par divers corps, et identifié la différence entre les forces magnétiques et les forces d'origine électrostatiques. Et c'est lui qui a nommé *electrics* les corps émettant ces dernières, en reprenant le mot grec *elektron* – qui désignait l'ambre. C'est donc lui qui est à l'origine, à la fois du domaine, et du nom, de l'électricité. Mais il semble que personne ne le sait, même à l'Ecole Supérieure d'Electricité ! Effet cumulé de la faiblesse de l'enseignement de l'histoire des sciences et d'un certain chauvinisme ?

### E.3.3 D'autres techniques électrostatiques, au cœur du développement de la physique atomique en France (Frédéric Joliot)

L'exposition *Doisneau chez les Joliot-Curie, un photographe au pays des physiciens* au CNAM, organisée par le Musée des Arts et Métiers, en 2005, a remis au goût du jour les « machines atomiques » qui ont été conçues ou adaptées par Frédéric Joliot-Curie, lorsqu'il a cherché à doter la recherche française en physique atomique (terme de l'époque) d'instruments comparables à ce qui existait alors dans plusieurs autres pays, notamment les Etats-Unis et la Grande Bretagne. En tant que conseiller scientifique de l'exposition, j'ai été amené à m'intéresser à la course « au faisceau » qui, entre 1927 et 1937, a amené les plus grands laboratoires de physique occidentaux à se doter de générateurs très haute tension pour alimenter des accélérateurs. Dans cette démarche, les questions d'électrotechnique ont joué un rôle capital, dans les deux voies qui ont été suivies : d'abord un aspect dominant électrostatique (avec la mise au point de générateurs de plusieurs MV), puis électromagnétique (avec la mise au point des premiers cyclotrons).

Pour synthétiser les principaux résultats des travaux que j'ai menés [84] (qui sont plus des travaux de synthèse que de recherche à proprement parler) :

- Un aspect très intéressant est ce passage de techniques essentiellement électrostatiques, à des techniques électromagnétiques : la course aux très hautes tensions, voie du « million de volt » s'avère finalement toucher à des limites. Il va falloir d'autres techniques. L'innovation dans les machines électrostatiques ne deviendra ensuite qu'un aspect secondaire de la physique atomique. Il faut, pour construire les premiers cyclotrons, maîtriser des techniques hautes fréquences, celles de la radio. Mais la France était très en retard sur ce point par rapport aux Etats-Unis ou à l'Allemagne, et bien des documents d'archives (notamment ses échanges avec Lawrence) illustrent la difficulté qu'a eu Frédéric Joliot à trouver en France des techniciens compétents dans ce domaine.
- Un autre aspect de cette course aux très hautes tensions pour la physique atomique est l'institutionnalisation de la science : naissance des laboratoires de physique modernes, naissance de ce qu'on a appelé la *Big Science* et des institutions qui permettront son financement. Et de ce point de vue, l'électrostatique va encore jouer longtemps un rôle, bien particulier : celui d'intéresser le grand public à la science et ainsi participer à la légitimation des dépenses demandées à l'Etat pour la recherche.

### E.3.4 L'utilisation de l'électrostatique dans la médiatisation de la science

Plus que d'autres sciences, l'électrostatique a en effet un lien particulier avec les démonstrations grand public. On pourrait bien sûr considérer que les démonstrations des bateleurs de foire faisant surgir de grandes étincelles et hérissant les longs cheveux des jeunes filles n'ont pas grand-chose à faire dans un travail présentant des recherches dans le domaine à l'horizon 2010. Et pourtant, si on cherche à comprendre la manière dont la recherche se développe, il faut bien s'intéresser à la manière dont la recherche se structure et obtient des financements, et cela amène à se poser la question de la médiatisation de la science auprès du grand public.

Et de ce point de vue, l'électrostatique continue à être utilisée avec une grande constance. Le fondateur de l'Electrostatic Society of America, le professeur A.D. Moore (1895-1989), était ainsi connu pour ses périples d'un bout à l'autre du pays avec son matériel de démonstration, le « zoo électrostatique », qui lui a permis d'assurer le rayonnement de sa discipline. Ce sujet de la médiatisation de la science est en réalité assez vaste, et plutôt que de le traiter sur toute sa surface, nous nous sommes quant à nous attachés à traiter en profondeur un évènement, qui a joué un rôle important en France, et dans lequel la mise en scène de l'Electrostatique a été fondamentale : la création du Palais de la Découverte.

Nous avons montré [85], que loin d'être anecdotique, le choix de mettre en scène un énorme double générateur de Van de Graaff produisant d'immenses arcs électriques, comme clou de



l'inauguration du Palais de la Découverte, illustre plusieurs aspects de la manière dont les scientifiques peuvent s'adresser au grand public pour défendre leurs disciplines, et justifier ainsi l'intérêt social de leurs recherches. Ces aspects sont détaillés dans la publication jointe.



Figure 78 : Démonstrations d'électrostatique à SFE 2008  
(Kamil Fadel, responsable de la physique au Palais, et Mike Kirkpatrick, du Département Energie, qui a survécu à la surprise générale) Photo P.Dessante



Figure 79 : Générateur Van de Graaff, sous la rotonde du Palais de la Découverte à son ouverture en 1937  
Musée Curie/coll. ACJC ©.

#### E.4 Conclusions et perspectives

On ne peut pas ne pas mentionner que la recherche en France est aujourd'hui en pleine restructuration, et que nous assistons aujourd'hui à une remise en cause profonde de l'édifice imaginé et construit à l'époque des Jean Perrin et des Frédéric Joliot. Ce sujet dépasse cependant largement le cadre de ce mémoire.

Nous pouvons synthétiser les idées exprimées dans ce chapitre par les points suivants :

- La recherche en électrostatique n'est pas le fait de laboratoires, ni d'équipes organisées sur cette thématique, mais la mise en commun d'expériences et de techniques issues d'individus ou d'équipes dispersées dans de multiples domaines de recherche, à travers des réseaux et des sociétés, assez structurées et pérennes, puisque certaines ont plus de 40 ans d'âge
- Dans l'ensemble, ces réseaux sont cependant insuffisants pour donner une cohérence et une visibilité à la recherche en électrostatique. C'est particulièrement vrai en France. La création de la Société Française d'Electrostatique et les 6 conférences qu'elle a organisé ont contribué à faire progresser les choses, mais dans certaines limites...

- La composante historique et « grand public » de la discipline reste importante. C'est une science qui est également souvent proche du concret, comme des applications, et qui est peut-être plus facile à médiatiser que d'autres. On peut s'appuyer sur ces aspects pour aider à la structuration du domaine, y compris scientifique.

Concernant les perspectives, il semble qu'il y ait une attente d'un nombre suffisant de chercheurs pour que la SFE et le réseau de recherche en France sur l'électrostatique se développent, le problème étant que ce travail repose sur peu d'individus, qui le font en marge de leur activité de recherches. La construction d'un site web digne de ce nom en est une étape pour le moins indispensable. Le développement d'une thématique originale d'histoire de l'électrostatique et celui des liens avec le Palais de la Découverte me paraissent aussi des axes autour desquels nous pouvons renforcer la visibilité de cette thématique. Une autre contribution que je tente d'apporter à ce domaine est une réflexion sur la structuration de la recherche en électrostatique, à partir d'une étude historique sur la naissance des réseaux que j'ai évoquée plus haut (§E.2.1). Pourquoi sont-ils apparus, à quels besoins correspondaient-ils, sont-ils toujours adaptés ? Ces questions que j'ai partiellement abordées dans ce travail, il m'a paru intéressant de les poser directement aux acteurs eux-mêmes. Dans cette perspective, j'ai contacté en mars 2010 plus de 30 scientifiques qui me semblaient avoir joué un rôle décisif dans la constitution de ces réseaux, et plusieurs d'entre eux ont accueilli favorablement cette initiative, notamment, parmi la quinzaine de réponses reçues (venant de six pays différents), Thomas B. Jones, Jen-Shih Chang, Peter Castle, Akira Mizuno, Arnold Kelly, Jeremy Smallwood, Kazutoshi Asano, Gérard Touchard, Mark Horenstein, Ed Law, Keping Sun. L'objectif est d'appréhender sur le long terme la dynamique d'ensemble de la recherche dans ce domaine très interdisciplinaire, et de fournir des éléments qui permettent de s'orienter pour l'avenir, en synthétisant les expériences de la génération qui a développé la discipline pendant 30 ans, entre 1970 et 2000. Une présentation pour le public francophone des résultats de cette étude sera faite à la prochaine conférence de la SFE, en prélude à une présentation plus internationale l'an prochain à la conférence Electrostatics 2011.



## F. En guise de conclusion générale

*Le type se dit : « si j'avais su que le bout du tunnel était à l'entrée...  
je n'aurais pas fait toute cette traversée pour rien ! »*

Raymond Devos

L'Electrostatique est au cœur de nombreuses problématiques, dans d'innombrables champs d'activité. Le contexte en termes de besoin social et industriel est très favorable. La difficulté essentielle qu'il m'a fallu surmonter pour le développement de cette thématique de recherche à Supélec était un relatif isolement, même si par ailleurs l'infrastructure matérielle et les moyens de l'école n'ont jamais fait défaut. A partir de la constitution d'une expertise dans un domaine relativement étroit (les mesures de potentiel de surface), le but essentiel de mon travail de ces dernières années a été axé sur l'élargissement de cette compétence et la constitution d'un réseau scientifique. Le groupe matériaux des GdR ME<sup>2</sup>MS, puis SEEDS, a joué pour moi un rôle important dans ce but, ainsi que la Société Française d'Electrostatique, dont je suis devenu un des animateurs.

Ce n'est cependant que récemment que ces liens multiples ont permis de formaliser des collaborations, et aujourd'hui les perspectives semblent plutôt favorables, avec plus de moyens humains (deux thèses et un post-doc sur ces thématiques aujourd'hui), et une plus grande visibilité, y compris internationale. Un enjeu à moyen terme est en effet de développer des collaborations à ce niveau, ce qui n'a pas encore été possible, malgré les nombreux contacts, en dehors de collaborations informelles avec l'Espagne (P. Llovera) et la Tunisie (N. Bouguila).

Il est enfin bien entendu légitime de s'interroger, à l'heure des gros regroupements de laboratoires, sur la place que peut occuper un chercheur isolé ou une toute petite équipe. Ma réponse est que le besoin scientifique est grand, pas seulement en termes de mise en place de projets lourds, mais également en termes de synthèse de résultats venus d'horizons multiples, car le savoir est très émietté, comme dans beaucoup d'autres domaines, mais plus particulièrement lorsqu'il s'agit d'électrostatique des matériaux. D'une part à cause des questions d'organisation de recherche dont nous avons parlé, concernant l'électrostatique, d'autre part parce qu'il s'agit de matériaux dont le comportement fait intervenir de multiples échelles (du nanomètre à l'échelle macroscopique) et mécanismes superposés. C'est de ce point de vue qu'un individu entouré d'un petit groupe de recherche peut trouver sa place dans un réseau large comprenant également de très grosses équipes, avec des moyens expérimentaux lourds.



## Références

*Les articles en gras sont donnés en annexe*

- [1] P. Llovera, «Etude des mécanismes d'injection de charge dans les matériaux isolants au moyen de mesures électrostatiques de déclin et retour de potentiel. Nouveaux outils d'analyse », Thèse de doctorat de l'Université Paris XI, 2002.
- [2] **P. Molinié, "Measuring and Modeling Transient Insulator Response to Charging: the Contribution of Surface Potential Studies", IEEE Trans. Dielectrics and Electr. Insul., Vol. 12, pp.939-950, 2005.**
- [3] D. Koch, « Caractérisation de surface par cartographie du potentiel; application à la détection de défauts liés à la corrosion », Thèse de doctorat de l'Université Paris XI, 2008.
- [4] P. Molinié, E. Odic, P. Dessante (eds.), *6ème Conférence de la société française d'électrostatique, Paris & Gif-sur-Yvette 7, 8 et 9 juillet 2008 : recueil de communications / Gif-sur-Yvette*, 2008.
- [5] P. Molinié, "Editorial : Electrostatics, the continuous renewal of an old science", IEEE Trans. Dielectrics and Electr. Insul., Vol. 16, pp. 585-586, 2009.
- [6] **P. Molinié, G. Touchard, "Ancient Science, Current Problems: Insight into the Vitality of Electrostatics Research Today", IEEE Trans. Dielectrics and Electr. Insul., Vol. 16, pp. 587-595, 2009.**
- [7] A.R. Von Hippel, *Les Diélectriques et leurs applications*, Dunod, Paris, 1961.
- [8] G.M. Sessler, "Charge distribution and transport in polymers", IEEE Trans. Dielectrics and Electr. Insul., Vol. 4, pp. 614-628, 1997.
- [9] D. Marty-Dessus, L. Berquez, A. Petre, J. L. Franceschi, "Space charge cartography by FLIMM: a three-dimensional approach", J. Phys. D: Appl. Phys., Vol. 35, pp. 3249-3256, 2002.
- [10] G. Teyssède, C. Lacabanne, «Caractérisation des polymères par analyse thermique », Techniques de l'Ingénieur N°P3770, 1996.
- [11] I. P. Batra, K. D. Kanazawa, H. Seki, "Discharge characteristics of photoconducting insulators", J. Appl. Phys, Vol. 41, pp. 3416-3422, 1970.
- [12] P. K. Watson, "The transport and trapping of electrons in polymers", IEEE Trans. Dielectrics and Electr. Insul., Vol. 2, pp. 915-924, 1995.
- [13] D. W. Vance, "Surface charging of insulators by ion irradiation", J. Appl. Phys., Vol. 42, pp. 5430-5443, 1971.
- [14] R. H. Young, "Kinetics of xerographic discharge by surface charge injection", J. Appl. Phys., Vol. 72, pp. 2993-3004, 1992.
- [15] G. M. Sessler, C. Alquié, J. Lewiner, "Charge distribution in Teflon FEP (fluoroethylenepropylene) negatively corona-charged to high potentials", J. Appl. Phys., Vol. 71, pp. 2280-2284, 1992.
- [16] H. Amjadi, "The mechanism of voltage decay in corona-charged layers of silicon dioxide during UV irradiation", IEEE Trans. Dielectrics and Electr. Insul., Vol. 7, pp. 222-228, 2000.
- [17] G. M. Sessler, "Charge storage in dielectrics", IEEE Trans. Electr. Insul., Vol. 24, pp. 395-402, 1989.
- [18] R. A. Moreno, B. Gross, "Measurement of potential buildup and decay, surface charge density, and charging currents of corona-charged polymer foil electrets", J. Appl. Phys., Vol. 47, pp. 3397-3402, 1976.

- [19] J. A. Giacometti, S. Fedosov, M. M. Costa, "Corona charging of polymers : recent advances on constant current charging", Brazilian J. Phys, Vol. 29, pp. 269-279, 1999.
- [20] M. Campos, J. A. Giacometti, "Surface-potential decay in insulators with deep traps", J. Appl. Phys., Vol. 52, pp. 4546-4552, 1981.
- [21] G. F. Leal Ferreira, M. T. Figueiredo, "Corona charging of electrets - Models and results", IEEE Trans. Electr. Insul., Vol. 27, pp. 719-738, 1992.
- [22] M. Ieda, G. Sawa, I. Shinohara, "A decay process of surface electric charges across polyethylene film", J. Appl. Phys., Vol. 6, pp. 793-794, 1967.
- [23] M. Ieda, G. Sawa, U. Shinohara, "Decay of electric charges on polymeric films", El. Eng. in Japan, Vol. 88, No. 6, pp. 67-73, 1968.
- [24] T. Mizutani, T. Oomura, M. Ieda, "Surface potential decay in polyethylene", Jap. J. Appl. Phys., Vol. 20, pp. 855-859, 1981.
- [25] R. Coelho, "The electrostatic characterization of insulating materials", J. Electrostatics, Vol. 17, pp. 13-27, 1985.
- [26] R. Coelho, P. Jestin, L. Levy, D. Sarraill, "On the return-voltage buildup in insulating materials", IEEE Trans. Electr. Insul. Vol. 22, pp. 683-690, 1987.
- [27] **P. Molinié, M. Goldman, J. Gatellet, "Surface potential decay on corona-charged epoxy samples due to polarization processes", J. Phys. D: Appl. Phys., Vol. 28, pp. 1601-1610, 1995.**
- [28] P. Molinié, "Potential decay interpretation on insulating films : necessity of combining charge injection and slow volume polarization processes", Proc. 7th Int Conf. DMMA, Bath, pp. 50-55, 1996.
- [29] **P. Molinié, "Charge injection in corona-charged polymeric films: potential decay and current measurements", J. Electrostatics, Vol. 45, pp. 265-273, 1999.**
- [30] P. Molinié, P. Llovera, "Théorie et pratique des mesures de retour de potentiel : des outils pour le suivi de l'injection de charge sur les films isolants", 3<sup>ème</sup> conférence SFE, Toulouse, juillet 2002.
- [31] **P. Llovera, P. Molinié, "New methodology for surface potential decay measurements. Application to the study of charge injection dynamics on polypropylene films", IEEE Trans. Dielectrics and Electr. Insul., Vol. 11, pp 1049-1056, 2004.**
- [32] H. J. Wintle, "Decay of static electrification by conduction processes in polyethylene", J. Appl. Phys, Vol. 41, pp. 4004-4007, 1970.
- [33] H. J. Wintle, "Surface charge decay in insulators with nonconstant mobility and with deep trapping", J. Appl. Phys., Vol. 43, pp. 2927-2930, 1972.
- [34] T. J. Sonnonstine, M. M. Perlman, "Surface potential decay in insulators with field dependent mobility and injection efficiency", J. Appl. Phys., Vol. 46, pp. 3975-3981, 1975.
- [35] K. J. Kao, S. S. Bamji, M. M. Perlman, "Thermally stimulated discharge current study of surface charge release in polyethylene by corona-generated excited molecules, and the crossover phenomenon", J. Appl. Phys., Vol. 50, pp. 8181-8185, 1979.
- [36] S. Haridoss, M. M. Perlman, C. Carlone, "Vibrationally excited diatomic molecules as charge injectors during corona charging of polymer films", J. Appl. Phys., Vol. 53, No. 9, pp. 6106-6114, 1982.
- [37] H. Von Berlepsch, "Interpretation of surface potential kinetics in HDPE by a trapping model", J. Phys. D: Appl. Phys., Vol. 18, pp. 1155-1170, 1985.
- [38] R. Coelho, B. Aladenize, "Contribution to the analysis of the decay of charged samples", IEEE CEIDP, pp. 621-625, 1995.

- [39] T. K. Saha, Z. T. Yao, "Experience with return voltage measurements for assessing insulation conditions in service-aged transformers", IEEE Trans. Power Del., Vol. 18, pp. 128-135, 2003.
- [40] F. Frutos, M. Acedo, J. C. Filippini, A. Jimenez, J. A. Perez-Gomez, I. Radu, "A preliminary study of the return voltage in polyethylene specimens with the point-plane and plane-plane geometry", Int. Conf. Dielectric Insulation, Budapest, 1997.
- [41] R. Robert, S. M. Berleze, "Integro-differential equation of absorptive capacitors", IEEE Trans. Dielectrics and Electr. Insul., Vol. 8, pp. 244-247, 2001.
- [42] E. A. Baum, T. J. Lewis, R. Toomer, "Further observations on the decay of potential corona charged polyethylene films", J. Phys. D: Appl. Phys., Vol. 10, pp. 2525-2531, 1977.
- [43] T.A. Yovcheva, I.A. Avramova, G.A. Mekishev, T.S. Marinova, "Corona-charged polypropylene electrets analyzed by XPS", J. Electrostatics, Vol. 65 pp. 667-671, 2007.
- [44] H. O. Jacobs, H. F. Knapp, S. Müller, A. Stemmer, "Surface potential mapping : a qualitative material contrast in SPM", Ultramicroscopy No. 69, pp. 39-49, 1997.
- [45] F. Galembeck, C. A. R. Costa, A. Galembeck, M. C. V. M. Silva, "Supramolecular ionics : electric charge partition within polymers and other non-conducting solids", An. Acad. Bras. Cienc., vol. 73, pp. 495-509, 2001.
- [46] E. A. Baum, T. J. Lewis, R. Toomer, "The lateral motion of charge on thin films of polyethylene terephthalate", J. Phys. D: Appl. Phys., Vol. 11, pp. 963-977, 1978.
- [47] D. K. Das Gupta, "Decay of electrical charges on organic synthetic polymer surfaces", IEEE Trans. Dielectrics and Electr. Insul., Vol. 25, pp. 503-508, 1990.
- [48] P. K. Watson, "The transport and trapping of electrons in polymers", IEEE Trans. Dielectrics and Electr. Insul., Vol. 2, pp. 915-924, 1995.
- [49] R. Coelho, B. Aladenize, N. Cornet, J. Bigarré, "On the transient potential in insulators", IEEE Trans. Dielectrics and Electr. Insul., Vol. 8, pp. 760-770, 2001.
- [50] D. K. Das Gupta, P. C. N. Scarpa, "Polarization and dielectric behavior of ac-aged polyethylene", IEEE Trans. Dielectrics and Electr. Insul., Vol. 3, pp. 366-374, 1996.
- [51] B. Gross, "On discharge voltage and return voltage curves for absorptive capacitors", Phys. Rev., Vol. 62, pp. 383-387, 1942.
- [52] A. K. Jonscher, Universal relaxation law, Chelsea Dielectrics Press, London, 1996.
- [53] S. M. Berleze, R. Robert, "Response functions and after effect in dielectrics", IEEE Trans. Dielectrics and Electr. Insul., Vol. 10, No. 4, pp. 665-669, 2003.
- [54] A. R. Frederickson, C. E. Benson, J. F. Bockman, "Measurement of charge storage and leakage in polyimides", Nucl. Instrum. and Meth. In Phys. B, Vol. 208, pp. 454-460, 2003.
- [55] V. Adamec, J. H. Calderwood, "The interpretation of potential decay on the surface of a charged dielectric specimen", J. Phys. D: Appl. Phys., Vol. 20, pp. 803-804, 1987.
- [56] J. A. Malecki, "Linear decay of charge in electrets", Phys. Rev. B, Vol. 59, pp. 9954-9960, 1999.
- [57] A. Crisci, B. Gosse, J. P. Gosse, V. Ollier-Duréault, "Surface potential decay due to surface conduction", Eur. Phys. J. AP., Vol. 4, pp. 107-116, 1998.
- [58] J. Kindersberger, C. Lederle, "Surface Charge Decay on Insulators in Air and Sulfurhexafluorid – Part I: Simulation", IEEE Trans. Dielectrics and Electr. Insul., Vol. 15, pp. 941-948, 2008
- [59] G. A. Mekishev, "Surface Processes in Charge Decay of Electrets", p. 219-244 in *Trends in Materials Science Research*, B. M. Caruta ed., Nova Science Publishers, New York, 2006
- [60] R. M. Hill, "Relaxation of surface charge", J. Phys. C: Solid State Phys., Vol. 8, pp. 2488-2501, 1975.



- [61] F. Mady, R. Renoud, J. P. Ganachaud, "Modelling of potential decay experiments. Influence of the microscopic charge transport processes on the macroscopic observable", 3ème Conférence SFE, Toulouse 2002.
- [62] S. Sahli, A. Bellel, Z. Ziari, A. Kahlouche, Y. Segui, "Measure and analysis of potential decay in polypropylene films after negative corona charge deposition", J. Electrostatics, Vol. 57, pp.167-181, 2003.
- [63] H. Scher, E. W. Montroll, "Anomalous transit-time dispersion in amorphous solids", Phys. Rev. B, Vol. 12, pp. 2455-2477, 1975.
- [64] A. Aragonese, M. Mudarra, J. Belana, J.A. Diego, "Study of dispersive mobility in polyimide by surface voltage decay measurements", Polymer, Vol.49, pp. 2440-2443, 2008.
- [65] V. I. Arkhipov, J. A. Popova, A. I. Rudenko, "Space-charge perturbed dispersive transport in disordered dielectrics", J. Electrostatics, Vol. 18, pp. 23-37, 1986.
- [66] W. Tomaszewicz, "Surface potential decay of disordered solids", J. Electrostatics, Vol. 51-52, pp. 340-344, 2001.
- [67] J. G. Simmons, M. C. Tam, "Theory of isothermal currents and the direct determination of trap parameters in semiconductors and insulators containing arbitrary trap distributions", Phys. Rev. B, Vol. 7, pp. 3706-3713, 1973.
- [68] H. Von Seggern, "Detection of surface and bulk traps", J. Appl. Phys., Vol. 52, pp. 4086-4089, 1981.
- [69] P. Molinié, P. Llovera, "Surface potential measurements: implementation and interpretation", 8<sup>th</sup> Conference on Dielectric Materials, Measurements and Applications, Edinburgh, 2000.
- [70] H. Sjöstedt, S. M. Gubanski, Y.V. Serdyuk, "Charging Characteristics of EPDM and Silicone Rubbers Deduced from Surface Potential Measurements", IEEE Trans. Dielectrics and Electr. Insul., Vol. 16, pp. 696-703, 2009.
- [71] D. Le Roy, G. Teyssède, C. Laurent, "Numerical Methods in the Simulation of Charge Transport in Solid Dielectrics", IEEE Trans. Dielectrics and Electr. Insul., Vol. 13, pp. 239-246, 2006.
- [72] J. Van Turnhout, *Thermally Stimulated Discharge of Polymer Electrets*, Elsevier, Amsterdam, 1975.
- [73] A. A. Rychkov, V. G. Boitzov, V. V. Shvets, "Energy distribution of surface traps for elongated in the water and corona charged PTFE films", IEEE 9th Symp. Electrets, pp. 89-92, 1996.
- [74] H. von Berlepsch, M. Pinnow, W. Stark, "Electrical conduction in acrylonitrile/methylacrylate copolymer films", J. Phys. D: Appl. Phys., Vol. 22, pp. 1143-1152, 1989.
- [75] I. Muzikante, E. Fonavs, A. Tokmakov, B. Stiller, L. Brehmer, O. Neilands, K. Balodis, "Studies of relaxation processes in poled dipolar dye-doped polymeric films", Materials Sci. and Eng. C, Vol. 22, pp. 213-217, 2002.
- [76] M. Fukuzawa, M. Iwamoto, "Analysis of the electric charge characteristic in an LDPE film under a needle-plane electrode system by using a TSSP measurement", Electr. Eng. Japan, Vol. 111, 2, pp. 1-10, 1990.
- [77] Z. Xu, L. Zhang, G. Chen, "Decay of electric charge on corona charged polyethylene", J. Phys. D: Appl. Phys., Vol.40, pp. 7085-7089, 2007.
- [78] L. Lévy, B. Dirassen, R. Reulet, M. Van Eesbeek, P. Molinié, "Dark and radiation induced conductivity on space used external coatings", 10th Int. Symp. Materials in a Space Environment, Collioure, 2006.

- [79] P. Notingher jr., S. Agnel, P. Molinié, Sylvestre A., Olariu M., Castellon J., Toureille A., Petre A., "Etude des charges d'espace dans le polyéthylène terephthalate soumis à des forts champs électriques", Conférence Matériaux pour le Génie Electrique, Lyon, 2005.
- [80] S. Agnel, J. Castellon, P. Notingher Jr, P. Molinié, A. Petre, D. Malec, "Etude des propriétés de charge d'alumines polycristallines utilisées comme substrat dans les composants de puissance", Proc. 6<sup>ème</sup> Conférence SFE, Paris, pp.113-118, 2008.
- [81] P. Molinié, S. Agnel, J. Castellon, "Investigations on charge accumulation and relaxation in polycrystalline  $Al_2O_3$ ", 10<sup>th</sup> Int. Conf. on Conduction and Breakdown in Solid Dielectrics, Potsdam (article accepté, Juillet 2010)
- [82] A. Raynal et R. Millet, « L'expérience retrouvée, la première mesure de la radioactivité », film en coproduction CNRS AV et Institut Curie, 28mn, 1998.
- [83] **P. Molinié, S. Boudia, "Mastering picocoulombs in the 1890s: the Curies' quartz-electrometer instrumentation, and how it shaped early radioactivity history", J. Electrostatics, Vol. 67, pp. 524–530, 2009.**
- [84] **P. Molinié, "Les machines atomiques : les instruments de la physique changent d'échelle", in *Doisneau chez les Joliot Curie, un photographe au pays de physiciens*, Musée des arts et métiers/CNAM et Romain Pages Editions, 2005.**
- [85] **P. Molinié, S. Boudia, "Exhibiting sparks of Big Science to the public. Electrostatics, atomic machines and experience of Paris Palais de la Découverte", IEEE Trans. Dielectrics and Electr. Insul., Vol. 16, pp. 751-757, 2009.**



## Liste des figures et tables

- Figure 1 : Statistiques d'occurrence du mot « space charge », IEEE TDEI 1965-2009
- Figure 2 : Mesures électrostatiques
- Figure 3 : Injection de charge dans un isolant avec conditions aux limites à champ nul
- Figure 4 : Xerographie (le brevet de l'invention, 1939)
- Figure 5 : Brevet « historique » du microphone à électrets (Sessler – West 1964)
- Figure 6 : *Cross-over* des courbes de déclin de potentiel [37]
- Figure 7 : Allure typique du retour de potentiel sur un transformateur vieilli
- Figure 8 : Modèle d'injection des électrons activés par la décharge couronne et le champ électrique
- Figure 9 : Principe de la sonde à condensateur vibrant
- Figure 10 : sonde capacitive (d'après Davies)
- Figure 11 : Moulin à champ (d'après Chubb)
- Figure 12 : Image miroir et son principe
- Figure 13 : Déclin et retour de potentiel
- Figure 14 : Fonctions de réponse de Jonscher [53]
- Figure 15 : Densités de charge et champ
- Figure 16 : Simulation de l'injection de charge lors du déclin de potentiel
- Figure 17 : Modèle du plan de charge unique
- Figure 18 : Charge et champ électrique lors de la simulation du retour de potentiel après un déclin de 80s
- Figure 19 : Simulation du retour de potentiel après divers temps de déclin
- Figure 20 : Déclin de potentiel calculé par un modèle de transport dispersif
- Figure 21 : DP sur polystyrène et traitement des données selon le modèle de l'énergie de démarcation [12]
- Figure 22 : Modèle de répartition des niveaux pièges du matériau
- Figure 23 : Evolution du peuplement des pièges de surface avec le temps
- Figure 24 : Différents mécanismes possibles pour expliquer le déclin de potentiel
- Figure 25 : Représentation d'exponentielles  $V_0 e^{-t/\tau}$
- Figure 26 : Représentation  $V(t)$  et  $tdV/dt=f(\log t)$
- Figure 27 : Représentation  $V(t)$  et  $tdV/dt=f(\log t)$
- Figure 28 : Banc de mesures de potentiel de surface
- Figure 29 : Sondes électrostatiques de mesure de potentiel
- Figure 30 : Poste de charge « pointe-grille »
- Figure 31 : Poste de charge « fil-grille »
- Figure 32 : Charge par rouleau électrostatique
- Figure 33 : Platine de mesures
- Figure 34 : Face avant du logiciel de cartographie
- Figure 35 : Mise en œuvre du retour de potentiel
- Figure 36 : Retour de potentiel après application d'une polarisation sinusoïdale
- Figure 37 : Banc de mesures

- Figure 38 : Electronique de mesures de charges
- Figure 39 TSSP sur des films de polyacrylonitrile montrant une augmentation anormale du potentiel [76].
- Figure 40 : Formule de la résine époxy DGEBA
- Figure 41 : Différents modes de charge [27]
- Figure 42 : Comparaison polarisation / déclin de potentiel
- Figure 43 : représentation  $\log(dV/dt)=f(\log t)$
- Figure 44 : Déclin et retour de potentiel pour différentes tensions initiales (époxy 190µm)
- Figure 45 : Représentation en  $tdV/V_0dt$  (normalisation par le créneau de tension appliqué)
- Figure 46 : Phénomènes transitoires apparaissant lors de l'application de créneaux répétés de potentiel
- Figure 47 : Echantillon FR4 avec cavité artificielle
- Figure 48 : Déclin de potentiel pour différentes tensions de charge SANS cavité
- Figure 49 : Déclin de potentiel pour différentes tensions de charge AVEC cavité
- Figure 50 : Modèle de structure et d'injection de charge dans FR4
- Figure 51 : Polypropylène isotactique
- Figure 52 : Réponse de base du polypropylène
- Figure 53 : Amplitude du « pic A » en fonction du potentiel
- Figure 54 : Application du modèle de l'énergie de démarcation au « pic A »
- Figure 55 : Courbes de déclin isotherme à différentes T
- Figure 56 : Pic C et comparaison avec la réponse de base
- Figure 57 : Cartographie de potentiel sur PET
- Figure 58 : Cartographie de potentiel sur PET
- Figure 59 : Cartographies différentielles sur PET, courant de charge 8µA
- Figure 60 : Cartographies différentielles sur PET, courant de charge 40µA
- Figure 61 : Cartographie (100mmx100mm) après métallisation évidée en « V »
- Figure 62 : Cartographie (100x100mm) de potentiel
- Figure 63 : Photographie et cartographie de V
- Figure 64 : Photographie et cartographie de potentiel au voisinage d'une blessure
- Figure 65 : Photographie des deux éprouvettes
- Figure 66 : Photographie et cartographie de la moitié de l'éprouvette 1
- Figure 67 : Défauts apparaissant après un vieillissement prolongé V3
- Figure 68 : Cartographies de la zone scarifiée de l'éprouvette2
- Figure 69 : Retour de potentiel normalisé au créneau de potentiel après déclin de 1800s
- Figure 70 : Déclins de potentiel de la zone du défaut D1
- Figure 71 : Perte de potentiel entre la charge et  $t=6s$  en fonction du vieillissement et de l'endroit
- Figure 72 : B. Dirassen et le dispositif SIRENE à l'ONERA
- Figure 73 : Conductivité équivalente sur des plaques de Teflon® SSM irradiées
- Figure 74 : Déclin de potentiel et mesures PEA [77]
- Figure 75 : Conférence SFE, repos bien mérité... Photo P.Dessante
- Figure 76 : Persécution électrostatique de jeunes scientifiques
- Figure 77 : Générateur de J.Curie à quartz piézoélectrique (photo S.B.-B.V.- ESPCI)
- Figure 78 : Démonstrations d'électrostatique à SFE 2008
- Figure 79 : Générateur Van de Graaff, sous la rotonde du Palais de la Découverte à son ouverture en 1937





## **ANNEXES**





## Liste des publications présentées

- A1. Molinié P., Goldman M., Gatellet J., "Surface potential decay on corona-charged epoxy samples due to polarization processes", J. Phys. D, 28, pp.1601-1610 (1995)
- A2. Molinié P., "Charge injection in corona-charged polymeric films: potential decay and current measurements", J.Electrostatics, 45(4), pp. 265-273 (1999)
- A3. Llovera P., Molinié P., "New methodology for surface potential decay measurements. Application to the study of charge injection dynamics on polypropylene films", IEEE Trans. Dielectrics and Electr. Insul., 11, pp 1049-1056 (2004)
- A4. Molinié P., "Measuring and Modeling Transient Insulator Response to Charging: the Contribution of Surface Potential Studies", IEEE Trans. Dielectrics and Electr. Insul., 12, pp.939-950 (2005)
- A5. Molinié P., "Les machines atomiques : les instruments de la physique changent d'échelle", in *Doisneau chez les Joliot Curie, un photographe au pays de physiciens*, Musée des arts et métiers /CNAM et Romain Pages Editions (2005)
- A6. Koch D., Molinié P., "Etalement de charge et effets anormaux sur des films de Polyéthylène Téréphtalate, étudiés par cartographie de potentiel", Revue Internationale de Génie Electrique, 9, pp. 449-463 (juillet 2006)
- A7. Molinié P., Alvarez D., "Etude de l'injection de charge sur des plaques d'élastomère silicone par mesures du potentiel de surface", Revue Internationale de Génie Electrique, 9, pp. 389-404 (juillet 2006)
- A8. Molinié P., "Réponse d'un matériau isolant à la charge électrique : mesure et modélisation", in *Matériaux diélectriques pour le génie électrique 1: propriétés, vieillissement et modélisation (Traité EGEM, série Génie électrique)*, Hermès-Lavoisier (2007)
- A9. Koch D., Molinié P., "Cavity detection on organic coatings by electrostatic measurements: A detailed study using FR4 fiberglass epoxy laminates", J. Electrostatics 66, pp. 467-475 (2008)
- A10. Llovera P., Molinié P., Soria A., Quijano A., "Measurements of electrostatic potentials and electric fields in some industrial applications: basic principles", J.Electrostatics, 67 pp. 457-461 (2009)
- A11. Molinié P., Boudia S., "Mastering picocoulombs in the 1890s: the Curies' quartz electrometer instrumentation, and how it shaped early radioactivity history", J.Electrostatics, 67, pp.524-530 (2009)

A12. Molinié P., Touchard G., "Ancient Science, Current Problems: Insight into the Vitality of Electrostatics Research Today", IEEE Trans. Dielectrics and Electr. Insul., 16, pp.587-595 (2009)

A13. Molinié P., Boudia S., "Exhibiting sparks of Big Science to the public. Electrostatics, atomic machines and experience of Paris *Palais de la Découverte*", IEEE Trans. Dielectrics and Electr. Insul., 16, pp.751-757 (2009)